



# Etude de la source et du transport des aérosols marins en zone côtière méditerranéenne

Ambre Demoisson

## ► To cite this version:

Ambre Demoisson. Etude de la source et du transport des aérosols marins en zone côtière méditerranéenne. Océan, Atmosphère. Université de Toulon, 2014. Français. NNT : 2014TOUL0018 . tel-01314438

**HAL Id: tel-01314438**

**<https://theses.hal.science/tel-01314438>**

Submitted on 11 May 2016

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**MER ET SCIENCES**

***Institut Méditerranéen d'Océanologie***

# THÈSE

Présentée par :

**Ambre DEMOISSON**

Soutenue le : **17 mars 2014**

Pour obtenir le grade de Docteur en Physique

Spécialité : Océanographie, Météorologie, Physique de l'aérosol

## **Etude de la source et du transport des aérosols marins en zone côtière méditerranéenne**

**THÈSE dirigée par :**

**Monsieur PIAZZOLA Jacques**

Professeur des Universités, Institut Méditerranéen  
d'Océanologie (MIO), Université de Toulon

**Monsieur TEDESCHI Gilles**

Maître de Conférences HDR, Institut Méditerranéen  
d'Océanologie (MIO), Université de Toulon

**JURY :**

**Madame CACHORRO Victoria**

Professeur des Universités, Université de Valladolid

**Monsieur CHAMI Malik**

Professeur des Universités, Laboratoire  
d'Océanographie de Villefranche (LOV), Université  
Paris VI

**Monsieur MALLET Marc**

Chargé de recherche CNRS, Laboratoire d'Aérodynamique  
(LA), Toulouse

**Monsieur MARCHAND Nicolas**

Maître de Conférences, Laboratoire Chimie  
Environnement (LCE-IRA), Université Aix-Marseille

**Madame GOUTX Madeleine**

Directeur de recherche CNRS, Institut Méditerranéen  
d'Océanologie (MIO)

**Monsieur SEMPERE Richard**

Directeur de recherche CNRS, Institut Méditerranéen  
d'Océanologie (MIO)









# Remerciements

*Merci aux membres du Jury d'avoir accepté de faire parti de cette commission d'examen, et particulièrement à mes deux rapporteurs, madame CACHORRO et monsieur CHAMI, qui ont apporté un grand soin à la lecture de ce manuscrit.*

*Je remercie également mes directeurs de thèse, Jacques PIAZZOLA et Gilles TÊDESCHI qui m'ont fait confiance et m'ont permis d'accomplir ce projet de thèse, qui n'aurait pu se réaliser sans l'aide de la région PACA.*

*Je tiens également à remercier le directeur du laboratoire, monsieur SEMPÈRE, pour m'avoir accueillie, tous les autres membres du laboratoire, avec un petit clin d'œil pour Tathy, ainsi que pour les autres doctorants.*

*Cette fin de thèse témoigne d'une avancée scientifique mais surtout d'une belle aventure humaine. C'est pourquoi, je tiens tout particulièrement à remercier mes copines de bureau Jenna et Gwen, qui sont devenues beaucoup plus à mes yeux, pour leur écoute, leur patience, leur bonne humeur et leur humour. J'ai également pu faire de très belles rencontres dans le couloir des « matheux », et les remercie pour leur bonne humeur et leurs précieux conseils. Je remercie également tous ceux que j'ai pu croiser et que je n'ai pu citer.*

*Un grand merci à ma famille et mes amis. À Christiane, Emilie, Laurent et ma mère, qui ont su m'écouter dans mes périodes de doutes et m'ont permis de reprendre confiance. À ceux qui ont accepté de m'entraîner pour la présentation orale... même s'ils n'ont pas compris grand-chose. À ceux qui sont venus de loin, en particulier Philippe et Olivier, pour me soutenir lors de l'examen final.*

*Et enfin, à mes filles, Ilina et celle qui pointera le bout de son nez dans quelques semaines, qui pour certains sont un obstacle à la réalisation d'une thèse mais qui pour moi sont à l'origine de la réussite car elles m'ont beaucoup appris et notamment à m'organiser, être plus efficace et surtout à relativiser ce qui dénoue bien des situations.*



*A Ilina et celle qui va bientôt pointer le bout de son nez...*



# Table des matières

## Liste des Figures

<b>Introduction générale .....</b>	<b>1</b>
------------------------------------	----------

<b>Partie 1 : Généralités sur les aérosols atmosphériques .....</b>	<b>7</b>
---	----------

<b>Chapitre 1. Les aérosols atmosphériques dans la CLA.....</b>	<b>9</b>
---	----------

1.1	Introduction.....	9
1.2	Définition.....	9
1.3	Emission des aérosols atmosphériques .....	9
1.3.1	Source des aérosols atmosphériques.....	9
1.3.2	Génération primaire ou secondaire .....	10
1.3.3	Taille des aérosols.....	11
1.3.4	Forme.....	12
1.4	Dynamique des aérosols atmosphériques.....	12
1.4.1	Advection et diffusion turbulente.....	13
1.4.2	L'élimination .....	13
1.5	La Couche Limite Atmosphérique Marine (CLAM) .....	15
1.5.1	Généralités .....	15
1.5.2	Structure atmosphérique .....	16
1.5.3	Stabilité atmosphérique .....	17

<b>Chapitre 2. L'aérosol marin.....</b>	<b>20</b>
---	-----------

2.1	Introduction.....	20
2.2	Interaction océan-atmosphère.....	20
2.2.1	Le vent .....	20
2.2.2	Les vagues .....	23
2.2.3	Le taux de déferlement .....	26
2.3	Générations des aérosols marins .....	27
2.3.1	Processus de génération.....	27

2.3.2	De la formation à l'élimination.....	28
2.4	Répartition verticale des aérosols marins dans la CLAM .....	30
2.5	Flux de production de particules marines.....	32
2.5.1	Méthodes de détermination du flux de production .....	32
2.5.2	Fonctions Sources .....	34
2.6	Modélisation de la concentration en aérosols.....	35
2.6.1	Modèles de chimie-transport .....	36
2.6.2	Modèles spécifiques aux aérosols marins.....	37
2.6.3	Le modèle numérique MACMod .....	39

## **Partie 2 : Modélisation..... 41**

### **Chapitre 3. Instrumentation et mesures ..... 43**

3.1	Introduction.....	43
3.2	La région méditerranéenne nord occidentale.....	44
3.2.1	Les vents dominants .....	44
3.2.2	Origine des masses d'air .....	45
3.3	Sites et instrumentation .....	47
3.3.1	La station de Porquerolles.....	47
3.3.2	Mesures en mer.....	49

### **Chapitre 4. Modélisation ..... 52**

4.1	Introduction.....	52
4.2	Marine Aerosol Concentration Model (MACMod) .....	52
4.2.1	Description.....	52
4.2.2	L'équation de transport.....	55
4.2.3	Discretisation.....	55
4.2.4	Equation matricielle.....	58
4.2.5	Physique du modèle et procédures .....	59
4.3	Paramétrisation du modèle.....	67
4.3.1	Le flux de dépôt.....	67
4.3.2	Fonction Source/Flux de production d'aérosols.....	68
4.3.3	Le profil vertical d'entrée de concentration .....	73
4.3.4	Influence des paramètres et options .....	74
4.4	Répartition verticale des aérosols .....	75

4.4.1	Profils verticaux modélisés par MACMod.....	75
4.4.2	Comparaison profils théoriques-MACMod.....	77
4.5	Synthèse.....	78

## **Chapitre 5. Caractérisation de l'aérosol marin en zone côtière méditerranéenne..... 80**

5.1	Introduction.....	80
5.2	Conditions expérimentales.....	80
5.2.1	Conditions météorologiques.....	80
5.2.2	Origine des masses d'air.....	83
5.2.3	Conditions « optiques ».....	86
5.2.4	Etat de mer.....	88
5.2.5	Suivi journalier.....	89
5.3	Distributions en taille des particules.....	91
5.3.1	Etude des distributions mesurées.....	91
5.3.2	Estimation de la différence de concentration mesurée entre Porquerolles et le bateau-Contribution du trait de côte.....	92
5.4	Caractérisation Physique des aérosols marins.....	97
5.4.1	Concentration en fonction du temps.....	97
5.4.2	Concentration en fonction des régimes de vent.....	98
5.4.3	Concentrations mesurées en fonction de la vitesse du vent.....	99
5.4.4	Concentrations mesurées en fonction du champ de vagues.....	101
5.4.5	Récapitulatif.....	105
5.5	Conclusion.....	107

## **Chapitre 6. Fonction Source de la production primaire de l'aérosol marin ..... 108**

6.1	Introduction.....	108
6.2	Méthodologie.....	108
6.3	Modification de la fonction source de Monahan et al. (1986).....	109
6.3.1	Monahan et al. (1986).....	109
6.3.2	Modification de la formulation du Whitecap.....	111
6.3.3	Modification du $dE/dr$ .....	113
6.4	Validation de la nouvelle fonction source dans MACMod.....	115
6.4.1	Evaluation de la concentration en aérosols marins à 10 m d'altitude.....	115
6.4.2	Evaluation de la répartition verticale des aérosols dans MACMod.....	119



6.5	Synthèse .....	131
-----	----------------	-----

## **Chapitre 7. Sources de l'aérosol côtier .....132**

7.1	Introduction.....	132
7.2	Caractérisation chimique des aérosols sur l'île de Porquerolles.....	132
7.2.1	Conditions expérimentales.....	133
7.2.2	Caractérisation Chimique des aérosols marins .....	135
7.2.3	Synthèse.....	140
7.3	Comparaison avec MACMod.....	141
7.4	Initialisation du modèle .....	144
7.5	Synthèse .....	145

## **Partie 3 : Applications & Perspectives .....147**

## **Chapitre 8. Modélisation du transport de particules marines sur la façade ouest de l'île de La Réunion.....149**

8.1	Introduction.....	149
8.2	Conditions climatiques.....	150
8.2.1	Régime de vent.....	150
8.2.2	Origine des masses d'air .....	153
8.2.3	Champ de vagues.....	154
8.3	Distributions granulométriques .....	156
8.3.1	Comparaison : Méditerranée vs La Réunion.....	156
8.3.2	Evolution de la concentration avec le vent .....	156
8.3.3	Evolution de la concentration le long de la façade nord-ouest de l'île .....	157
8.4	Couplage MACMod-MEDEX-Réunion .....	158
8.4.1	Calcul de la concentration à St Denis à l'aide de MACMod.....	158
8.4.2	Mise en place du couplage MACMod-MEDEX-Réunion .....	160
8.5	Transport de particules à l'échelle locale .....	163
8.5.1	Influence du trafic routier sur le transport de particules à l'échelle hectométrique.....	163
8.5.2	Modélisation du transport de particules sur la façade nord ouest de la Réunion	166
8.6	Synthèse .....	168

<b>Chapitre 9. MACMod &amp; La prévision de la Qualité de l'air .....</b>	<b>170</b>
9.1    Problématique .....	170
9.2    Modélisation des PM <sub>10</sub> .....	171
9.2.1    Définition.....	171
9.2.2    Les cartes prévisionnelles et d'observation des PM <sub>10</sub> .....	171
9.2.3    Modélisation des PM <sub>10</sub> avec MACMod.....	173
9.3    Evaluation de la concentration en PM <sub>10</sub> à l'aide de MACMod .....	173
9.4    Synthèse .....	175
<b>Conclusion générale &amp; Perspectives.....</b>	<b>177</b>
<b>Bibliographie .....</b>	<b>181</b>
<b>ANNEXES .....</b>	<b>191</b>
<b>Annexe 1 : Expression de la fraction de couverture moutonneuse....</b>	<b>191</b>
<b>Annexe 2 : Récapitulatif des différentes méthodes de détermination du flux de production d'aérosols marins.....</b>	<b>192</b>
<b>Annexe 3 : Exemple de fonctions sources .....</b>	<b>193</b>
<b>Annexe 4 : Article scientifique .....</b>	<b>198</b>



# Liste des Figures

Figure 1-1 : Classes modales des aérosols atmosphériques en masse et en nombre.....	11
Figure 1-2 : Forme des aérosols atmosphériques .....	12
Figure 2-1: Les différents types de déferlement.....	25
Figure 2-2: Les différentes zones de déferlement.....	25
Figure 2-3 : Le déferlement à l'origine de la couverture moutonneuse (Resch 1982) .....	26
Figure 2-4 : Eclatement d'une bulle à l'origine des gouttes de jet et gouttes de film .....	28
Figure 2-5 : Flux de production des aérosols marins en fonction de la taille des particules calculés à partir de diverses fonctions sources, pour un vent de $8 \text{ m.s}^{-1}$ (De Leeuw et al. 2011) .....	35
Figure 2-6 : Concentrations calculées par MEDEX (pointillé rouge) et mesurées (trait plein bleu) sur l'Atalante (MIRAMER 2008) en fonction du diamètre des particules : (a) $X=7 \text{ km}$ et $U=5 \text{ m.s}^{-1}$ et (b) $X=250 \text{ km}$ et $U=10 \text{ m.s}^{-1}$ .....	38
Figure 3-1 : Vents soufflant dans la région méditerranéenne nord occidentale (carte Google Earth) .....	44
Figure 3-2 : Retrotrajectoire des masses d'air pour différentes conditions de vents dans la région méditerranéenne (HYSPLIT) .....	46
Figure 3-3 : Localisation de la station de Porquerolles (carte Google Earth) .....	47
Figure 3-4 : Station de Porquerolles : (a) Mat équipé de capteurs et (b) Eolienne et panneaux photovoltaïques.....	48
Figure 3-5 : Equipements de l'Atalante (MIRAMER 2008).....	49
Figure 3-6 : Stations de mesures de l'Atalante durant la campagne MIRAMER 2008 (carte Google Earth) .....	50
Figure 3-7 : Bouée et houlographe, campagne MIRAMER et PREVIMER .....	51
Figure 4-1 : Concentration en particules d'aérosols marins générées à l'interface air-mer, en fontion du temps, calculée par MACMod.....	53
Figure 4-2 : Concentration en particules d'aérosols en fonction du temps, calculée par MACMod. Initialisation avec un profil vertical de concentration à l'entrée du domaine.....	54
Figure 4-3 : Maillage du domaine ( $w$ (west), $e$ (east), $b$ (bottom) et $t$ (top)) .....	56
Figure 4-4 : Vitesse de dépôt en fonction de la vitesse du vent pour des particules d'aérosols de $1 \mu\text{m}$ (a) et $5 \mu\text{m}$ (b).....	67
Figure 4-5 : Concentration MACMod en fonction du vent pour les vitesses de dépôt de Vignati et al. (2001) en bleu et Fairall & Davidson (1986) en rouge pointillé .....	68
Figure 4-6 : Flux de production de particules marines pour un vent de $10 \text{ m.s}^{-1}$ .....	69

Figure 4-7 : Comparaison entre les concentrations calculées par MACMod utilisant différentes fonctions sources et les mesures (Atalante, campagne MIRAMER).....	71
Figure 4-8 : Fraction de couverture moutonneuse en fonction du vent .....	72
Figure 4-9 : Concentration en fonction de la vitesse du vent pour des particules de 1 $\mu\text{m}$ .....	72
Figure 4-10 : Concentration en fonction de l'altitude pour deux profils de concentrations initiaux ( $U=10\text{m.s}^{-1}$ , $r=1\mu\text{m}$ ) .....	73
Figure 4-11 : Profil vertical estimé par MACMod pour différentes taille de particule (a), pour différentes valeurs du fetch (b), du vent pour un flux de production fonction du vent (c) et pour un flux constant (d) et différents écarts de température entre l'air et l'eau (e), pour des particules de 5 $\mu\text{m}$ . .....	76
Figure 4-12 : Comparaison profil vertical théorique et modélisé par MACMod dans la CLAM pour des particules de 1 $\mu\text{m}$ (a) et 5 $\mu\text{m}$ (b) .....	77
Figure 4-13 : Comparaison profil vertical modélisé par MACMod et théorique pour différentes valeurs du paramètre d'échelle et des particules de 1 $\mu\text{m}$ . .....	78
Figure 5-1 : Direction du vent à Porquerolles du 17 au 26 mai 2008 .....	81
Figure 5-2 : Répartition des intervalles de vitesses de vent du 17 au 26 mai 2008 à Porquerolles .....	81
Figure 5-3 : Humidité relative en fonction du régime de vent sur l'île de Porquerolles, du 17 au 23 mai .....	82
Figure 5-4 : Vents NE et SO en fonction de l'humidité relative.....	82
Figure 5-5 : Vitesse et direction du vent à Porquerolles du 17 au 26 mai 2008 (moyenne horaire) .....	82
Figure 5-6 : Pression et Humidité relative à Porquerolles du 17 au 26 mai 2008.....	83
Figure 5-7 : Rétrotrajectoires des masses d'air du 18 au 28 mai 2008 dans la baie de Toulon Hyères (HYSPLIT) .....	84
Figure 5-8 : Classification des aérosols en fonction du coefficient d'Angström et de l'AOD (Toledano et al., 2007).....	86
Figure 5-9 : Coefficient d'Angström mesuré sur le site du SESDA à St Mandrier (AERONET, level 1.5) .....	87
Figure 5-10 : Epaisseur optique mesurée sur le site du SESDA à St Mandrier (AERONET, level 1.5) .....	88
Figure 5-11 : Hauteur significative (trait plein bleu), fréquence pic (trait plein rouge) et longueur d'onde (trait plein vert) des vagues, houlographe PREVIMER .....	89
Figure 5-12 : Distributions granulométriques des stations 2 (a), 3 (b), 10 (c) et 11 (d) du bateau, de Porquerolles (c et d) et du modèle MEDEX.....	92
Figure 5-13 : Rapport de concentration entre les mesures de Porquerolles et celles du bateau en fonction du diamètre des particules. ....	93
Figure 5-14 : Vents mesurés à Porquerolles et sur le bateau .....	93

Figure 5-15 : Direction moyenne du vent mesuré à Porquerolles et sur le bateau.....	93
Figure 5-16 Longueur de fetch à Porquerolles et sur le bateau .....	94
Figure 5-17 : Position des différentes stations du bateau et de Porquerolles.....	94
Figure 5-18 : Hauteur significative des vagues au large de Porquerolles (PREVIMER) et à l'est du cap Sicie (MIRAMER).....	94
Figure 5-19 : Déferlement parasite sur le trait de côte autour de la station de Porquerolles (Google Earth) .....	96
Figure 5-20 : Bathymétrie autour de la station de Porquerolles (carte IGN, géoportail), profondeur supérieure à 50 m en blanc, profondeur entre 20 et 50 m en turquoise et profondeur inférieure à 20 m en bleu. ....	96
Figure 5-21 : Concentration des particules de 1 $\mu\text{m}$ et vent mesurés sur Porquerolles .....	97
Figure 5-22 : Concentration moyenne de particules de rayon 0.5 $\mu\text{m}$ (a) et 5 $\mu\text{m}$ (b) en fonction de différentes classes de vitesse de vent (Porquerolles).....	99
Figure 5-23 : Concentration en particules (en log) en fonction de la vitesse du vent en fetch limité pour des particules de 0.5 $\mu\text{m}$ (a) et 5 $\mu\text{m}$ (b) (Porquerolles) .....	100
Figure 5-24 : Concentration en particules (en log) en fonction de la vitesse du vent en fetch infini pour des particules de 0.5 $\mu\text{m}$ (a) et 5 $\mu\text{m}$ (b) (Porquerolles) .....	100
Figure 5-25 : Pente (a) et Ordonnée à l'origine (b) des régressions linéaires de la concentration en particules en fonction de la vitesse du vent.....	101
Figure 5-26 : Concentration en particules de 0.5 $\mu\text{m}$ (a) et 5 $\mu\text{m}$ (b) en fonction de la hauteur significative des vagues (vent SO).....	102
Figure 5-27 : Concentration en particules de 0.5 $\mu\text{m}$ (a) et 5 $\mu\text{m}$ (b) en fonction de la longueur d'onde des vagues, vent SO .....	102
Figure 5-28 : Concentration en particules de 0.5 $\mu\text{m}$ (a) et 5 $\mu\text{m}$ (b) en fonction de la période significative des vagues, vent SO .....	103
Figure 5-29 : Concentration en particules de 0.5 $\mu\text{m}$ (a) et 5 $\mu\text{m}$ (b) en fonction de la cambrure significative des vagues, vent SO .....	103
Figure 5-30 : Concentration en particules de 0.5 $\mu\text{m}$ (a) et 5 $\mu\text{m}$ (b) en fonction de la fréquence pic des vagues, vent SO .....	104
Figure 5-31 : Concentration en particules de 0.5 $\mu\text{m}$ (a) et 5 $\mu\text{m}$ (b) en fonction du nombre de vagues, vent SO .....	104
Figure 5-32 : Concentration en particules de 0.5 $\mu\text{m}$ (a) et 5 $\mu\text{m}$ (b) en fonction de l'âge des vagues, vent SO .....	105
Figure 5-33 : Coefficient de corrélation des régressions linéaires de la concentration en fonction des différents paramètres météorologiques et océanographiques pour cinq tailles de particules.....	106
Figure 6-1 : Décomposition du $dE/dr$ en 3 termes .....	111
Figure 6-2 : Couverture moutonneuse en fonction du vent .....	113

Figure 6-3 : $dE/dr$ de Monahan et al. (1986) et Demoisson et al. (2013) en fonction du rayon des particules.....	115
Figure 6-4 : Comparaison entre les mesures effectuées durant la campagne MIRAMER, MACMod utilisant D13 et MACMod utilisant M86 .....	117
Figure 6-5 : Station du réseau AERONET dans la région ouest Méditerranéenne.....	120
Figure 6-6 : Retro-trajectoire à Palma de Mallorca le 17/12/2011 à 12h (Hysplit).....	121
Figure 6-7 : carte des vents à Palma de Mallorca le 17/12/2011 à 12h (Hysplit).....	121
Figure 6-8 : Retro-trajectoire à Lampedusa le 24/04/2011 à 15h (Hysplit).....	122
Figure 6-9 : carte des vents à Lampedusa le 24/04/2011 à 15h (Hysplit).....	122
Figure 6-10 : Retro-trajectoire à Lampedusa le 20/07/2011 à 15h (Hysplit) .....	122
Figure 6-11 : carte des vents à Lampedusa le 20/07/2011 à 15h (Hysplit).....	122
Figure 6-12 : Retro-trajectoire le 25/09/2009 à 15h à Ersa .....	123
Figure 6-13 : Carte des vents le 25/09/2009 à 15h à Ersa.....	123
Figure 6-14 : Retro-trajectoire le 28/05/2011 à 15h à Ersa .....	123
Figure 6-15 : Carte des vents le 28/05/2011 à 15h à Ersa .....	123
Figure 6-16 : Retro-trajectoire le 22/01/2007 à 12h à Messina.....	124
Figure 6-17 : Carte des vents le 22/01/2007 à 12h à Messina.....	124
Figure 6-18 : Retro-trajectoire le 12/07/2012 à 16h à Porquerolles.....	125
Figure 6-19 : Carte des vents le 12/07/2012 à 16h à Porquerolles .....	125
Figure 6-20 : Retro-trajectoire le 15/07/2012 à 16h à Porquerolles.....	125
Figure 6-21 : Carte des vents le 15/07/2012 à 16h à Porquerolles .....	125
Figure 6-22 : Retro-trajectoire le 13/11/2010 à 16h au Frioul .....	126
Figure 6-23 : Carte des vents le 13/11/2010 à 16h au Frioul.....	126
Figure 6-24 : Analogie entre la grille du modèle et le site de mesures.....	127
Figure 6-25 : Boîte à moustache du facteur d'écart entre les mesures (AERONET) et les simulations (MACMod) par rapport à la taille des particules (a), à la station (b), à l'altitude des stations (c), au fetch (d), au vent (e) et au type de particules (f). ....	130
Figure 7-1 : Rose des vents durant un épisode de vent côtier à Porquerolles (HYSPLIT) .....	133
Figure 7-2 : Rétrotrajectoire durant un épisode de vent côtier à Porquerolles (HYSPLIT).....	133
Figure 7-3 : Rose des vents durant un épisode de Mistral à Porquerolles (HYSPLIT) .....	134
Figure 7-4 : Rétrotrajectoire durant un épisode de Mistral à Porquerolles (HYSPLIT) .....	134
Figure 7-5 : Rose des vents durant un épisode de Mistral à Porquerolles (HYSPLIT) .....	135
Figure 7-6 : Rétrotrajectoire durant un épisode de Mistral à Porquerolles (HYSPLIT) .....	135
Figure 7-7 : Pourcentage de contribution en masse des différents composés analysés et des résidus et masse totale de l'échantillon en fonction du diamètre aérodynamique dans le cas des masses d'air côtières.....	136

Figure 7-8 : Fractions fine et grossière et concentration massique de chaque composé pour les masses d'air d'origine côtière.....	137
Figure 7-9 : Pourcentage de contribution en masse des différents composés analysés en fonction du diamètre aérodynamique des échantillons dans le cas de Mistral .....	138
Figure 7-10 : Fractions fine et grossière et concentration massique de chaque composé dans le cas de Mistral.....	138
Figure 7-11 : Pourcentage de contribution en masse des différents composés analysés en fonction du diamètre aérodynamique des échantillons de masses d'air en provenance de la Méditerranée .....	139
Figure 7-12 : Fractions fine et grossière et concentration massique de chaque composé dans des conditions Méditerranéennes.....	140
Figure 7-13 : Comparaison MACmod mesures (a) conditions côtières, (b) Mistral et (c) conditions méditerranéennes.....	143
Figure 8-1 Les quatre stations de mesures sur la façade nord-ouest de l'île de La Réunion (Google Earth) .....	150
Figure 8-2 : Carte des vents dans des conditions d'Alizés à La Réunion, le 25/07/2012 à 12h (HYSPLIT). L'étoile rouge représente La Réunion. ....	151
Figure 8-3 : Carte des vents à La Réunion lors du passage du cyclone Dumile, le 03/01/2013 à 12h (HYSPLIT). L'étoile rouge représente La Réunion. ....	152
Figure 8-4 : Fréquence du vent en vitesse (a) et en direction (b) à St Denis, Moulin Cader, Petite Chaloupe et La Possession. ....	153
Figure 8-5 : Retro-trajectoire des masses d'air dans des conditions Alizés, le 25/07/2012 à 12h (HYSPLIT).....	154
Figure 8-6 : Hauteur significative et direction des vagues issue du modèle wavewatch III à la Réunion le 25/07/2012 à 14h (PREVIMER) .....	155
Figure 8-7 : Distributions granulométrique en Méditerranée (MIRAMER) et à La Réunion (St Denis) .....	156
Figure 8-8 : Relation entre le logarithme de la concentration et la vitesse du vent à St Denis pour des particules de 0.5 $\mu\text{m}$ (a) et 5 $\mu\text{m}$ (b).....	157
Figure 8-9 : Relation entre le logarithme de la concentration et la vitesse du vent à St Denis, Moulin Cader et La Possession pour des particules de 5 $\mu\text{m}$ .....	157
Figure 8-10 : Distribution granulométrique moyenne mesurée aux stations de St Denis, Moulin Cader, Petite Chaloupe et La Possession pour un vent de 6 $\text{m.s}^{-1}$ .....	158
Figure 8-11 : Vitesses du vent niveau mer et niveau falaise mesurés à st Denis et vitesse du vent théorique niveau falaise calculé par MACMod.....	160
Figure 8-12 : Coefficient a en fonction du rayon des particules. Les symboles '+' et '-' correspondent respectivement à la moyenne, au maximum et minimum, les	



sommets supérieurs et inférieurs des rectangles représentent l'intervalle de confiance à 98%.....	161
Figure 8-13 : Coefficient d'Angström (a) et Epaisseur optique (b) le 11 octobre 2012 à St Denis (AERONET).....	163
Figure 8-14 : Concentration mesurée « côté mer » et « côté falaise » de la route et vitesse du vent pour des particules de diamètre égal à 0.21 $\mu\text{m}$ (a), 1.5 $\mu\text{m}$ (b) et 8 $\mu\text{m}$ (c) (Heure UTC).....	165
Figure 8-15 : Rapport de concentrations mesurées sur la route « côté mer » et « côté falaise » au cours du temps (a) et en fonction du vent (b) pour des particules de 0.1, 0.4 et 5 $\mu\text{m}$ . La droite noire correspond au cas où la concentration est identique des deux côtés de la route.....	166
Figure 8-16 : Schéma de la simulation, position des quatre stations à La Réunion et Initialisation de MACMod avec MEDEX-Réunion.....	167
Figure 9-1 : Le grand Smog de Londres en 1952.....	170
Figure 9-2 : Pic de $\text{PM}_{10}$ (a) et de poussières désertiques (b) le 20 mai 2008 (PREV'AIR).....	172
Figure 9-3 : Concentration à la surface marine d'aérosols marins (DREAM-SALT) le 20 (a) et le 21 (b) mai 2008.....	172

# Introduction générale

## A. Généralités

Les particules d'aérosols atmosphériques, qu'elles soient issues de sources naturelles ou anthropiques, jouent un rôle majeur dans un grand nombre de processus physico-chimiques de la basse troposphère. De ce fait, leur contribution à l'évolution climatique est reconnue (Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC), 2013). Cependant, l'estimation de leur impact reste un challenge scientifique important du fait des larges incertitudes qui subsistent dans l'estimation de leurs sources et dans l'étude de leur dynamique dans l'atmosphère. Cette difficulté est plus particulièrement liée aux variations spatio-temporelles de ces particules, leurs origines diverses (naturelle, anthropique et mélangée), leurs transport et transformations chimiques dans la troposphère. Par conséquent, il est difficile d'obtenir une évaluation précise de leur impact climatique à échelle régionale ou globale. De plus, les aérosols atmosphériques ont un effet important sur le bilan radiatif terrestre (Andreae, 1995; Bergstrom and Russell, 1999) en diffusant et absorbant le rayonnement incident (effet direct) et en modifiant le cycle de vie et les propriétés radiatives des nuages (effet indirect). Dans la basse atmosphère, l'aérosol contribue à la pollution de l'air et de l'eau avec des conséquences néfastes sur la santé humaine (Holgate et al. 1999). Par exemple, l'inhalation de métaux lourds, de composés organiques tels les HAPs (Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques) ou les PCBs (Polychlorobiphényles) présents dans les aérosols urbains ont des effets toxiques voire cancérogènes. L'estimation des sources d'aérosols et de leur devenir atmosphérique est donc primordiale pour les modèles climatiques globaux et la prévision de la qualité de l'air à l'échelle locale.

Avec deux tiers de la surface terrestre recouverte par les océans, les particules générées à l'interface air-mer constituent une composante majeure de l'aérosol naturel, notamment en zone maritime (Jaenicke, 1984; Andreae, 1995; Yoon et al., 2007; Piazzola et al. 2009). Les particules d'aérosol marin primaires résultent de l'interaction entre le vent et les vagues. Lors du déferlement des vagues, des bulles d'air sont entraînées dans l'eau jusqu'à plusieurs mètres de profondeur. Elles remontent puis éclatent à la surface générant des gouttes de film et des gouttes de jet. Par ailleurs, des gouttelettes d'eau salée sont aussi directement arrachées par le vent à la crête des vagues. Les différentes gouttelettes produites possèdent des propriétés physico-chimiques différentes (Lewis & Schwartz, 2004) leur permettant d'intervenir dans de nombreux domaines. En effet, les aérosols marins jouent un rôle fondamental dans la chimie atmosphérique, le bilan radiatif (Laskin et al., 2003; Mallet et al. 2003; Mulcahy et al., 2008), la météorologie, la physique des nuages, le climat, l'océanographie et l'écologie côtière. Ils ont également des conséquences dans les secteurs économiques, technologiques et sanitaires. Ils

permettent ainsi le transport d'une grande variété de contaminants, et notamment de la matière organique (Blanchard 1983; Cavalli et al, 2004; O'Dowd et al, 2004; Yoon et al, 2007; Ceburnis et al, 2008). De plus, ils influencent fortement la qualité de l'air en zone côtière (Knipping & Dabdub 2003) par leur capacité à interagir physiquement et chimiquement avec les autres types d'aérosols et les gaz présents dans l'air. L'aérosol marin est majoritairement constitué de chlorure de sodium (NaCl) et de petites quantités d'autres sels tels que le sulfate, calcium et potassium, ce qui lui confère sa solubilité et son hygroscopicité. Il peut également contenir des quantités non négligeables de carbone organique. De récentes études basées sur des mesures effectuées sur la zone côtière nord atlantique ont mis en évidence une forte variation saisonnière des propriétés chimiques des aérosols en relation avec la forte activité biologique de l'océan (Cavalli et al. 2004, O'Dowd et al. 2004). Par ailleurs, des études menées en Méditerranée dans la région toulonnaise ont montré une variation de la composition chimique des aérosols marins en fonction de l'origine des masses d'air (Piazzola et al. 2012).

La mer Méditerranée, située à la croisée de l'Europe, l'Asie et l'Afrique, représente moins de 1% de la surface océanique mondiale. Cependant sa configuration lui confère un fort intérêt scientifique. Elle constitue, en effet, un mini-océan répondant plus rapidement aux changements environnementaux et pourrait représenter dans une certaine mesure « un laboratoire » naturel qui nous permettrait d'anticiper l'évolution des systèmes océaniques de plus grande échelle. Dans ce bassin quasi-fermé, la mer peut être fortement agitée avec des vents violents ce qui est à l'origine d'une production importante de particules marines. D'autre part, le pourtour méditerranéen abrite une forte activité anthropique (agriculture, industrie, résidence, grands centres urbains, port maritime, axes de transit et notamment trafic maritime) et une grande diversité de paysages (forêt, désert, volcan, marécages). Ainsi, les sources naturelles et anthropiques d'aérosols atmosphériques sont multiples : mer, poussières désertiques, transport, industries, agriculture, résidences, feux de forêt et plus ponctuellement émissions volcaniques. De plus, via les aérosols marins, les polluants contenus dans l'eau (apports fluviaux, rejets industriels, trafic maritime, dégazage) sont éjectés dans l'atmosphère. Le fort ensoleillement, caractéristique du climat méditerranéen, ainsi que la présence de sels marins dans une atmosphère polluée favorisent également une pollution photochimique. En raison de toutes ces sources de pollution atmosphérique, la surveillance de la qualité de l'air est devenue une priorité dans la région méditerranéenne.

L'Institut Méditerranéen d'Océanologie (MIO), créé en 2012, est spécialisé dans la recherche et l'observation du milieu marin ainsi que les interactions océan-atmosphère et océan-continent. A ce titre, les travaux du MIO s'inscrivent en partie dans les programmes scientifiques du chantier MISTRALS (Mediterranean Integrated STudies at Regional And Local Scales) piloté par l'INSU, et plus particulièrement dans le programme CHARMEX (CHemistry AeRosol Mediteranean EXperiment). Ce dernier vise une meilleure connaissance de l'état actuel et de l'évolution future de l'environnement atmosphérique du bassin méditerranéen et de ses impacts sur le climat régional, la qualité de l'air et la bio géochimie marine et continentale. L'un des objectifs de ce

programme est, entre autre, d'étudier le flux de génération et le transport des particules dans la couche limite atmosphérique marine (CLAM).

La connaissance de la source et du transport des aérosols marins en Méditerranée est donc un enjeu important dans la surveillance de la qualité de l'air et des modèles climatiques. C'est dans ce cadre que s'inscrit ce travail de thèse dont **l'objectif principal est d'approfondir nos connaissances concernant les processus de génération et de transport des aérosols marins en zone côtière**. Ces connaissances permettront d'améliorer les performances du modèle de transport et de génération des aérosols marins MACMod développé au laboratoire.

## B. Déroulement de la thèse

Ce travail de thèse est composé de trois parties : généralités, modélisation et applications.

### Partie 1 : Généralités sur les aérosols atmosphériques

La première partie est consacrée à l'étude de l'évolution des aérosols atmosphériques dans la couche limite atmosphérique, et plus particulièrement, à la génération et au flux de production des aérosols marins. L'objectif est d'acquérir des connaissances nécessaires à l'amélioration de la modélisation de la source et du transport des aérosols marins en zone côtière dans la couche limite atmosphérique marine. La difficulté essentielle concerne l'estimation des flux de production d'aérosols marins. En effet, ceux-ci dépendent de nombreux paramètres physiques et chimiques tels que le vent, le champ de vague, la température de l'air et de l'eau ou encore la composition chimique de l'eau. De plus, les particules sont transportées de manière différente suivant leur taille et peuvent interagir entre elles ou avec le milieu gazeux, ce qui complexifie également l'approche de modélisation. Cette base de connaissance est essentielle pour améliorer et obtenir un modèle de transport et de génération des aérosols marins fiable. Cette partie se divise en deux chapitres.

Le premier chapitre est une étude générale des **aérosols** résidant dans la **couche limite atmosphérique**. Ces particules proviennent de différentes **sources** anthropiques ou naturelles et sont issues de processus mécaniques ou chimiques. La population d'aérosols est très disparate en termes de nature, de forme, de taille ou encore en nombre. De plus, ces particules évoluent dans le milieu gazeux. Elles sont susceptibles de se **transformer**, d'**être transportées** ou de se **déposer**. Les déplacements et les processus d'élimination dépendent principalement de la taille des particules et des conditions environnementales.

Le chapitre 2 se concentre sur la génération de **l'aérosol marin**. L'interaction entre le vent et les vagues est à l'origine de trois types de particules aux propriétés physico-chimiques différentes. Les gouttes de jet et les gouttes de film sont générées lors du déferlement des vagues alors que le troisième type de gouttes est issu de l'écrêtage des vagues par le vent. Le flux de production primaire à l'interface air-mer est communément appelé « **fonction source** ». Les méthodes de

détermination de la fonction source sont très diverses et utilisent généralement des mesures de concentration. La dernière partie de ce chapitre introduit les différents modèles de transport d'aérosols les plus courants : CHIMERE, MOCAGE, DREAM-SALT, WRF-CHEM, et enfin les modèles développés au laboratoire : le modèle paramétrique MEDEX et le modèle de transport MACMod.

## Partie 2 : Modélisation

La deuxième partie est consacrée à l'amélioration d'outils de modélisation du transport et de génération des aérosols marins en zone côtière. Cette partie se divise en cinq chapitres numérotés de 3 à 7.

Le chapitre 3 décrit les campagnes de mesures exploitées dans cette étude.

Le chapitre 4 est une description détaillée du modèle MACMod (**Marine Aerosol Concentration Model**) développé au MIO (Tedeschi & Piazzola 2011). MACMod est destiné à prédire la concentration en aérosols marins dans la couche limite atmosphérique marine. C'est un modèle bidimensionnel (xOz) instationnaire qui intègre l'équation générale du transport en utilisant la méthode des volumes finis (Patankar & Spalding 1972). Il est codé en MATLAB et est constitué de plusieurs procédures dédiées à chaque processus physique (flux de dépôt, flux de production, *etc.*). Dans un premier temps, une comparaison des calculs de MACMod utilisant la configuration d'origine du modèle et des mesures expérimentales sont reportées et ses performances sont alors évaluées. En vue de l'amélioration du modèle MACMod, un premier travail a consisté à réévaluer le flux de production primaire de l'aérosol marin à partir de mesures. L'analyse des données utilisées pour ce travail est reportée au chapitre 5. Dans ce chapitre, l'influence des différents paramètres météorologiques et océanographiques sur la concentration en aérosols dans la CLAM est étudiée en se basant sur les mesures effectuées lors de la **campagne MIRAMER 2008**. Notre analyse permet de mettre en évidence **l'influence des caractéristiques du champ de vagues sur la production des particules marines**.

Le chapitre 6 est consacré à la détermination d'une **fonction source caractéristique** de la région méditerranéenne nord-occidentale à partir d'une méthodologie originale et des mesures acquises durant la campagne MIRAMER. A la lumière des résultats obtenus au chapitre 5, la formulation proposée s'écrit comme une fonction de paramètres météorologiques et océanographiques. De plus, elle a introduit une différenciation des différents types de gouttelettes produites. La fonction source est ensuite validée à partir de données acquises pour différentes conditions météo-océanographiques (fetch de 20 à 350 km et vent de 4 à 28 m.s<sup>-1</sup>). Le rapport entre les concentrations mesurées et calculées par MACMod est réduit à 3 (facteur de confiance 68%) dans la gamme de taille 0.5-5 µm, alors qu'il était de l'ordre de 10 dans la configuration originale.

Le modèle MACMod permet donc des prédictions de bonne qualité pour des conditions météo-océanographiques purement marine (grand fetch). La question des conditions aux surfaces frontières du modèle se pose alors en particulier pour des directions de vents offshore ou de fetch court. C'est pourquoi, le chapitre 7 est consacré à l'étude de la **composition chimique** des aérosols pour des conditions de vent variables mesurés lors de **la campagne Porquerolles 2007** (Piazzola et al. 2013; Piazzola et al. 2012; Sellegri et al. 2001). Ceci permet d'étudier la contribution marine dans les échantillons d'aérosols. Des simulations avec MACMod sont effectuées pour trois types de conditions de mesures. Les sorties du modèle sont converties en concentrations massiques et comparées aux masses totales et aux masses de sels marins des échantillons mesurés. On montre que MACMod surestime la concentration en sels de mer et estime correctement les concentrations en aérosols marins puisqu'il semble peu tenir compte des composantes terrigènes et/ou anthropiques des aérosols submicroniques. Pour prendre en compte les particules de source **terrigen**e et/ou **anthropique** dans le modèle, il est nécessaire de l'initialiser avec un profil vertical de concentration en aérosols à l'entrée du domaine de calcul. Le profil vertical est spécifique à la source des particules étudiées et aux conditions météorologiques.

### Partie 3 : Applications et Perspectives.

Cette partie se divise en deux chapitres.

Le chapitre 8 concerne une étude menée à La Réunion sur les particules d'aérosols marins transitant sur la façade nord-ouest de l'île. Cette campagne s'inscrit dans le cadre d'un important projet financé par la région Réunion concernant la création d'une nouvelle route entre St Denis et le Port. L'objectif premier était d'évaluer l'impact sur les concentrations en aérosols marins le long de la falaise avec l'éventuelle modification du trait de côte. Pour ce faire, nous avons étudié le transport de particules marines le long de la façade nord-ouest de l'île en utilisant MACMod. Nous avons au préalable réalisé le **couplage MACMod-MEDEX-Réunion** qui a permis de modéliser le transport en initialisant le modèle avec un profil d'entrée déterminée à l'aide de MEDEX-Réunion.

Le chapitre 9 est une étude préliminaire sur l'utilisation de MACMod pour la **qualité de l'air**. Elle pourrait permettre de connaître la fraction de particules marines dans les **concentrations de  $PM_{10}$** . Une procédure permet de calculer les concentrations en  $PM_{10}$  à partir des sorties de MACMod. Pour les stations de Porquerolles et du navire Atalante (campagne MIRAMER), les sorties du modèle ont été comparées à des mesures de  $PM_{10}$  et des cartes analysées du réseau PREV'AIR. Les résultats obtenus sont très encourageants.



# **Partie 1 : Généralités sur les aérosols atmosphériques**

Cette première partie fait l'état des connaissances sur les processus de génération et le transport des aérosols marins dans la couche limite atmosphérique. Cette partie se divise en deux chapitres.

Le premier propose un état de l'art de l'étude des propriétés et de la dynamique de l'aérosol dans la couche limite atmosphérique.

Le deuxième chapitre s'articule autour de la modélisation des aérosols, et plus particulièrement les aérosols marins. Dans un premier temps, nous visons une meilleure compréhension des processus de génération de l'aérosol marin par les interactions vent-vagues, puis nous étudions les différentes méthodes de formulation du flux de production, et enfin, nous nous intéressons aux différents modèles.





# Chapitre 1. Les aérosols atmosphériques dans la CLA

## 1.1 Introduction

Les aérosols atmosphériques proviennent de diverses sources potentielles générant des particules de taille, de forme ou de nature très différentes. Ce chapitre fait l'état des connaissances sur les sources, la dynamique et les propriétés de l'aérosol dans la couche limite atmosphérique (CLA).

## 1.2 Définition

Un aérosol désigne une suspension de particules liquides ou solides dans un milieu gazeux pendant un temps suffisant à leur observation. Les particules d'aérosols atmosphériques sont des particules en suspension dans l'atmosphère autres que les gouttelettes et les cristaux des nuages.

## 1.3 Emission des aérosols atmosphériques

Les **sources** de particules d'aérosols atmosphériques sont très nombreuses. Elles peuvent être naturelles ou anthropiques. Les particules peuvent être directement émises dans l'atmosphère, dans ce cas l'aérosol est dit « **primaire** », ou résulter d'une conversion de gaz en particule, il est alors dit aérosol « **secondaire** ». La **taille**, la **composition chimique** et la **forme** des particules sont donc très variables.

### 1.3.1 Source des aérosols atmosphériques

D'Almeida et al. (1991) estiment les quantités produites d'aérosols atmosphériques de l'ordre de plusieurs milliers de mégatonnes par an (Tableau 1-1) sur l'ensemble de la planète. Selon ses estimations, la source marine représente entre 30% et 70% de la production totale en masse, les

poussières désertiques représentent environ 7% et approximativement 5% des aérosols sont d'origine anthropique. Les quantités de particules émises sont donc très variables d'une source à l'autre et dépendent des mécanismes de production.

<b>Origine naturelle (en mégatonnes/an pour des particules de rayons inférieurs à 100 <math>\mu\text{m}</math>)</b>		
	<b>Min</b>	<b>Max</b>
Poussières extraterrestres	10	18
Sel marin	$10^3$	$10^4$
Poussières désertiques	500	2 000
Biologiques, biogéniques	80	
Conversion gaz-particules (sulfates, organiques, nitrates)	345	1 100
Débris volcaniques	25	250
<b>Total</b>	<b>3 266</b>	<b>13 448</b>
<b>Origine anthropique (en mégatonnes/an)</b>		
Emission directe de particules	10	90
Conversion gaz-particules (substances carbonées, organiques, nitrates, sulfates)	175	325
Feux de forêt	3	150
<b>Total</b>	<b>188</b>	<b>565</b>
<b>Total général</b>	<b>3 454</b>	<b>14 013</b>

Tableau 1-1 : Estimation des quantités de particules d'aérosol atmosphérique d'origine naturelle et anthropique (D'Almeida et al. 1991)

### 1.3.2 Génération primaire ou secondaire

Les particules d'**aérosols primaires** sont généralement créées de façon mécanique puis introduites dans le milieu gazeux. Lorsqu'elles sont d'origine naturelle, elles sont issues de l'action du vent sur les surfaces continentales (arrachement, soulèvement, remise en suspension), ou sur les surfaces marines (écrêtage des vagues, ou gouttes générées par l'éclatement des bulles lors du déferlement de vagues), ou sur la végétation (spores de pollen). Les éruptions volcaniques émettent ponctuellement une quantité importante de particules ainsi que les feux de forêts. Lorsqu'elles sont d'origine anthropique ou artificielle, elles sont le plus souvent le résultat d'actions humaines (mines, usinage, activité industrielle, feux, *etc.*).

Les **aérosols secondaires** sont créés lors d'une réaction physicochimique du gaz atmosphérique. Il s'agit plus précisément de la transformation d'une phase gazeuse en une phase condensée (liquide ou solide) : ce processus s'appelle nucléation à partir d'un précurseur gazeux. Suivant l'origine du gaz subissant la transformation, le processus sera naturel (émanations de gaz biogéniques par exemple) ou anthropiques (rejets gazeux par l'activité industrielle). En général, les

particules générées par des processus secondaires sont de très petite taille alors que les particules arrachées par le vent sont plus grosses.

### 1.3.3 Taille des aérosols

La dimension moyenne des aérosols atmosphériques varie de quelques nanomètres à plusieurs centaines de microns. Leur distribution en taille est généralement représentée par des lois log-normales. La Figure 1-1 représente les concentrations en nombre et en masse des aérosols en fonction de leur diamètre. On distingue trois classes modales, décrites suivant la terminologie de Whitby (1978) :

- Le mode nucléation pour les particules de diamètre de l'ordre de  $0.01\ \mu\text{m}$ .
- Le mode accumulation pour celles de  $0.1\ \mu\text{m}$ .
- Le mode grossier pour celles de plus de  $1\ \mu\text{m}$ .

Dans le mode nucléation, la concentration numéraire en particules est la plus importante alors que l'essentiel de la masse de particules est dans le mode d'accumulation. Les particules submicroniques sont généralement des aérosols secondaires alors que les particules supermicroniques sont des aérosols primaires.

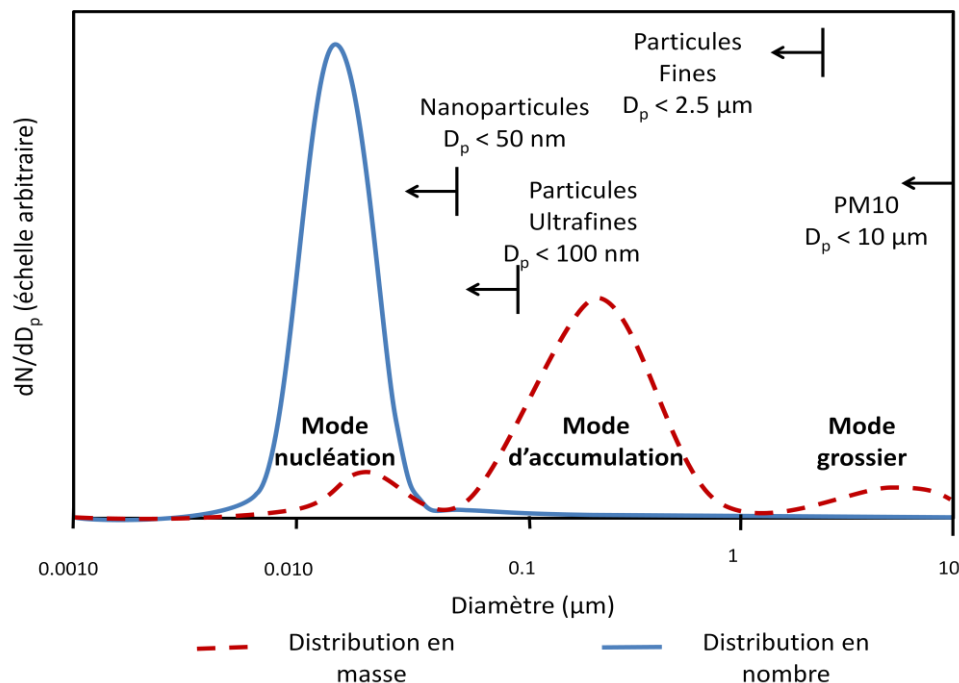


Figure 1-1 : Classes modales des aérosols atmosphériques en masse et en nombre

### 1.3.4 Forme

L'organisation des molécules engendre des formes de particules très variées. Les aérosols atmosphériques peuvent être de forme sphérique, allongée, plate. La Figure 1-2 illustre ces différentes formes d'aérosols en fonction de leur source.

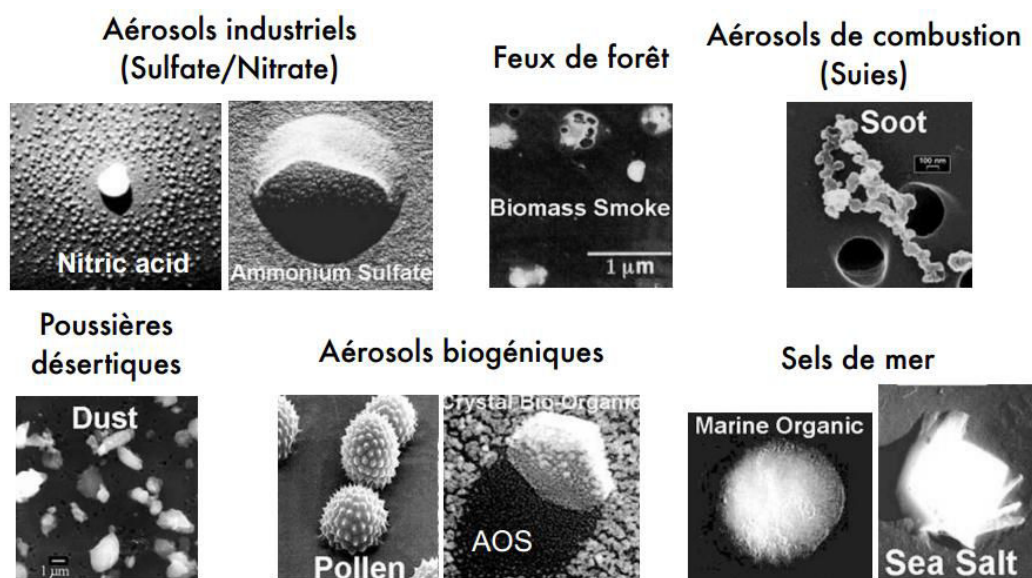


Figure 1-2 : Forme des aérosols atmosphériques

A l'échelle macroscopique, le diamètre des particules est généralement ramené à un diamètre sphérique : le **diamètre aérodynamique** ou le **diamètre équivalent**. Le diamètre aérodynamique correspond au diamètre d'une particule sphérique d'une masse volumique de  $1 \text{ g.cm}^{-3}$  ayant la même vitesse de sédimentation. Le diamètre équivalent est le diamètre d'une particule sphérique de même volume. En ramenant le diamètre réel à un diamètre équivalent, on suppose le transport des particules similaire dans l'atmosphère, quelque soit leur forme.

## 1.4 Dynamique des aérosols atmosphériques

Les particules injectées dans l'atmosphère sont transportées par le vent (**advection**), se **dispersent** sous l'effet de plusieurs processus (turbulence, diffusion de Fick, diffusion Brownienne) et sédimentent sous l'effet de la gravité. L'importance des processus de transport est fonction essentiellement de la taille des particules.

### 1.4.1 Advection et diffusion turbulente

Les particules d'aérosols sont advectées par l'écoulement du fluide. Dans l'atmosphère, l'advection est essentiellement horizontale. Le flux d'advection  $F$  s'écrit :

$$F = \vec{U} \cdot \vec{\nabla} C \quad (1-1)$$

où  $U$  est la vitesse du vent et  $C$  la concentration en particules.

Or, dans l'atmosphère, l'écoulement de l'air est généralement turbulent. Les particules sont donc mélangées dans l'atmosphère par diffusion turbulente. Le flux de diffusion turbulente se détermine à partir des fluctuations de la vitesse du vent et de la concentration. Celles-ci étant complexes à déterminer, une approche répandue consiste à raisonner par analogie avec la diffusion moléculaire (ou diffusion de Fick). On admet alors généralement que le flux est proportionnel au gradient de concentration par l'intermédiaire d'un coefficient de diffusivité turbulent  $K$  :

$$\overline{u_i' C'} = -K \frac{dC}{dx_i} \quad (1-2)$$

où  $u_i'$  est la composante turbulente du vent dans la direction  $x_i$ ,  $C'$  la fluctuation de concentration et  $K$  le coefficient de diffusivité.

A l'échelle globale, l'advection transporte sur des distances allant jusqu'à plusieurs centaines de kilomètres alors que la diffusion de Fick n'impacte que sur quelques millimètres ce qui pourtant correspond à plus de 1000 fois la taille des particules. A grande échelle, la diffusion turbulente et l'advection prédominent sur les autres mécanismes de déplacement des particules.

### 1.4.2 L'élimination

#### a. Le dépôt sec

Le dépôt sec correspond au cas où les particules se déposent dans leur état. Ce processus peut avoir lieu soit par impaction sur une paroi ou obstacle lorsque les particules sont en mouvement par diffusion brownienne ou turbulente, soit par sédimentation, sous l'effet de la gravité pour les plus grosses particules. Le flux de dépôt  $dF/dr$  est supposé proportionnel au produit de la vitesse de dépôt  $V_d$  et de la concentration en particules  $dN/dr$ . Il s'écrit :

$$\frac{dF}{dr} = V_d \left( \frac{dN}{dr} \right) \quad (1-3)$$

La vitesse de dépôt  $V_d$  n'est pas une vraie vitesse, mais un terme ayant les mêmes dimensions qu'une vitesse. Il existe différents modèles d'estimation de la vitesse de dépôt (Fairall & Davidson 1986; Vignati et al. 2001). En cas de faible turbulence, Carruthers & Choularton (1986) proposent :

$$V_d = \frac{V_g}{1 - \exp\left(-\frac{V_g}{C_D U}\right)} \quad (1-4)$$

avec  $C_D$  le coefficient de traînée et  $V_g$  la vitesse terminale de chute (ou vitesse gravitationnelle), c'est-à-dire, la vitesse d'un objet lorsque les frottements exercés par l'air sont compensés par son poids.

### b. Le dépôt humide

Lors du dépôt humide les particules sont éliminées par des particules précipitantes (pluie, brouillard, neige, etc.). Les particules d'aérosols sont donc soit lessivées lors de précipitations, soit piégées à l'intérieur des gouttes des nuages.

### c. La sédimentation

La sédimentation s'applique à des grosses particules qui chutent sous l'effet de la gravité. Elle résulte de l'équilibre entre le poids  $P$  et la force de traînée  $F_T$ . Cette dernière correspond à la résistance du gaz et dépend du coefficient de traînée  $C_D$ , fonction du nombre de Reynolds de la particule.

$$P = \frac{\rho_p g \pi D_p^3}{6} \quad (1-5)$$

$$F_T \approx \frac{\rho_a \pi C_D D_p^2 V_g^2}{8} \quad (1-6)$$

où  $\rho_a$  et  $\rho_p$  sont respectivement les masses volumiques de l'air et de la particule,  $D_p$  le diamètre de la particule,  $g$  la constante gravitationnelle et  $V_g$  la vitesse gravitationnelle. Cette dernière est alors déduite de l'égalité de ces deux forces :

$$V_g = \sqrt{\frac{4 \rho_p D_p g}{3 \rho_a C_D}} \quad (1-7)$$

La valeur du coefficient de frottement dépend du nombre de Reynolds, de la vitesse ainsi que de la force de traînée qui n'est pas linéaire. La vitesse gravitationnelle des particules dépend de leur taille. Des transformations telles que la coagulation peuvent grossir les particules et favoriser leur élimination du milieu.

## d. Coagulation

La coagulation a lieu lorsque les particules s'entrechoquent et restent collées pour ne former plus qu'une seule particule. Ce processus est donc à la fois à l'origine d'une disparition en nombre des particules et d'une augmentation en taille mais sans modification de la masse totale qui est donc conservée. Tous les couples de taille de particules sont possibles. Plus la concentration en particules est élevée et plus la population est poly-dispersée en taille, plus la formation de nouvelles particules par coagulation est efficace. Ce processus repose sur le fait que les particules doivent être en mouvement les unes par rapport aux autres pour se rencontrer. Les phénomènes générant ces mouvements sont essentiellement le mouvement Brownien, la sédimentation et la turbulence.

## 1.5 La Couche Limite Atmosphérique Marine (CLAM)

### 1.5.1 Généralités

La majorité des aérosols est générée, transportée et piégée dans la **couche limite atmosphérique**. Dans la modélisation du transport d'aérosols en zone côtière, il est donc important de connaître l'influence des conditions atmosphériques sur la dynamique des aérosols.

La couche limite atmosphérique (CLA) est la zone de la troposphère directement influencée par les frottements sur la surface terrestre. Elle répond avec une échelle de temps très brève, de l'ordre de l'heure, aux différents forçages causés par la surface du sol. Elle est très sensible aux variations diurnes/nocturnes et le rayonnement solaire est sa principale source d'énergie. Variant de quelques centaines de mètres à plusieurs kilomètres, elle est délimitée à sa base par la surface terrestre (continent ou océan) et à son sommet par l'atmosphère libre où les frottements sont alors négligeables. Au dessus de la surface marine, on parle de **Couche Limite Atmosphérique Marine** (CLAM).

Contrairement à la surface continentale, la surface océanique est en mouvement et interagit très fortement avec le vent. De plus, elle est beaucoup plus uniforme et possède une longueur de rugosité plus petite. Cependant, lorsque le vent augmente, les vagues se développent entraînant une augmentation de sa rugosité. Ainsi, les processus de turbulence mécanique dans l'air sont accentués. Par conséquent, les propriétés de l'atmosphère marine diffèrent considérablement de celles de l'atmosphère continentale. L'humidité relative est plus importante et les variations diurnes de température sont plus faibles en raison de l'inertie thermique de la mer. L'océan fournit un réservoir important de chaleur et d'humidité. Le mélange turbulent dans la couche limite atmosphérique marine (CLAM) est moins énergétique que sur le continent avec une



turbulence mécanique moins importante en raison des frottements plus faibles. La CLAM est souvent caractérisée par des conditions de stabilité thermiques très proches du neutre ou de l'instable. Sa structure verticale est relativement peu variable et son épaisseur varie peu dans l'espace et le temps.

### 1.5.2 Structure atmosphérique

La structure et l'épaisseur de la CLAM varient en fonction de la latitude et de la température de surface de la mer. Dans les latitudes moyennes et hautes, le vent moyen près de la surface est plus fort générant une concentration en particules marines plus importante. Dans ces zones, la CLAM est bien mélangée, nuageuse et délimitée par une inversion thermique.

La CLAM est divisée en plusieurs couches caractérisées par des vitesses de vent et des facteurs de contrôle (stress, viscosité, etc.) différents. Ces différentes couches sont :

- La sous-couche visqueuse  $\delta$  d'environ 1 mm, voire moins, est directement en contact avec la surface marine ( $z=0$ ). Le flux moléculaire prédomine sur le flux turbulent.
- La couche de surface de plusieurs dizaines de mètres d'épaisseur est fortement influencée par les effets thermiques et dynamiques. Dans la couche de surface se créent des petites structures turbulentes qui s'élèvent et croissent avec l'altitude, ce qui tend à homogénéiser l'atmosphère. Il est généralement admis que le flux et les frottements sont constants, sauf très près de la surface car par fort vent les embruns sont des sources locales de chaleur et de vapeur d'eau pouvant être à l'origine de variation des flux (Mestayer & Tranchant 1994).
- La couche d'Ekman ou de mélange, d'une épaisseur de plusieurs centaines de mètres jusqu'au kilomètre, correspond à la limite supérieure de la CLAM. De part son éloignement au sol, les effets thermiques et dynamiques de la surface terrestre sont négligeables devant les effets des forces de pression et de Coriolis. Le vent subit alors une rotation à droite dans l'hémisphère nord et à gauche dans l'hémisphère sud pour un anticyclone.

Au sommet de la CLAM, il y a une forte inversion de température résultant d'un changement de densité et d'humidité relative avec l'atmosphère libre, ce qui entraîne un arrêt des mouvements verticaux. Dans l'atmosphère libre, les flux sont contrôlés par des gradients de pression de grande échelle et les forces de Coriolis. Le flux est géostrophique et caractérisé par une faible turbulence et donc un faible mélange de matière dont les aérosols. De l'air de l'atmosphère libre peut être entraîné dans la CLAM conduisant une augmentation de son épaisseur.

### 1.5.3 Stabilité atmosphérique

#### a. Stratification atmosphérique

Les mouvements d'air verticaux sont fortement influencés par la variation verticale de la température potentielle  $\theta$ . La CLAM est alors stratifiée de façon stable, instable ou neutre.

- A un état stable ( $\partial\theta/\partial z > 0$ ), la surface terrestre est plus froide que l'air créant un gradient de température statiquement stable. Les fluctuations turbulentes verticales sont contrées par les effets thermiques affaiblissant ainsi la turbulence.
- A un état neutre ( $\partial\theta/\partial z = 0$ ), le profil de température est similaire à une transformation adiabatique, la turbulence n'est que d'origine mécanique. Dans la nature le cas est assez rare, il est probablement approché sur la mer lorsque la variation diurne de température de surface est peu marquée ou en présence d'une couverture nuageuse.
- A l'état instable ( $\partial\theta/\partial z < 0$ ), le flux de chaleur sensible est orienté vers le haut. La turbulence thermique est très importante et peut se superposer à la turbulence dynamique. La CLAM est fortement brassée et ses propriétés tendent à s'homogénéiser suivant la verticale sauf près de la surface. Elle se divise typiquement en deux couches : la couche de surface où se maintiennent le fort cisaillement vertical du vent et le gradient adiabatique de la température potentielle moyenne, et au dessus, la zone « mélangée » où le vent et la température potentielle sont quasi uniformes.

La connaissance de la stabilité atmosphérique est importante dans la modélisation des aérosols car elle influe sur le transport vertical des aérosols. Il est donc nécessaire de l'évaluer grâce à un paramètre de stabilité.

#### b. Paramètre de stabilité atmosphérique

##### *Théorie de Similitude de Monin-Obukhov*

La stabilité atmosphérique se caractérise généralement par la théorie de similitude de Monin & Obukhov (1954) qui introduit le paramètre adimensionnel  $\zeta$  :

$$\zeta = \frac{z}{L} \quad (1-8)$$

Avec  $z$  l'altitude et  $L$  la longueur de mélange de Monin-Obukhov (Stull 1988) définie telle que :

$$L = - \frac{\overline{\theta_v} u_*^3}{g \kappa w' \overline{\theta_{vs}}} \quad (1-9)$$

où,  $w'$  est la fluctuation de la vitesse verticale du vent,  $g$  la constante gravitationnelle,  $u_*$  la vitesse de frottement,  $\theta_v$  la température virtuelle potentielle de l'air,  $\theta'_{vs}$  la fluctuation de température virtuelle potentielle de l'air à l'interface air-mer et  $\kappa$  la constante de Von Karman ( $\approx 0.4$ ). Lorsque le flux est constant,  $L$  est constant. Cette longueur permet de déterminer à partir de quelle hauteur les effets de la stratification sont dominés par la turbulence. Panofsky & Dutton (1984) utilisent le paramètre  $\zeta$  pour interpréter ces effets :

- $\zeta \ll 0$  : Convection dominante
- $\zeta < 0$  : Turbulence mécanique dominante
- $\zeta = 0$  : Pure turbulence mécanique
- $\zeta > 0$  : Turbulence mécanique tempérée par stratification de la température
- $\zeta \gg 0$  : Turbulence mécanique bien réduite par stratification de température

### Nombre de Richardson

Le paramètre  $\zeta$  peut également être évalué à l'aide du nombre de Richardson,  $R_i$ ,

$$R_i = \frac{g(\partial\theta/\partial z)}{\theta_v(\partial\bar{u}/\partial z)} \quad (1-10)$$

C'est un nombre sans dimension qui a pour avantage de ne faire intervenir que les gradients. Cependant, il varie avec l'altitude et se détermine expérimentalement. Une variante clé de ce paramètre est le nombre de « Richardson flux », qui permet de décrire les effets de la stratification sur la génération de turbulence. Il est de la forme suivante :

$$R_{i_{flux}} = \frac{g}{\theta_v} \frac{\overline{w'\theta'_v}}{\overline{u'w'}(\partial\bar{u}/\partial z)} \quad (1-11)$$

où  $\theta'_v$  est la température virtuelle. L'inconvénient du nombre de Richardson flux est la difficulté de connaître les valeurs des flux. C'est pourquoi, dans de nombreuses applications il lui sera préféré le nombre de « Richardson-bulk » qui n'utilise que les valeurs moyennes (Stull 1988):

$$R_{i_B} = \frac{gz \Delta\theta + 0.61\theta\Delta Q}{\theta_v (\Delta\bar{u})^2} \quad (1-12)$$

où  $\Delta\bar{u} = \bar{u} - \bar{u}_0$ ,  $\Delta\theta = \theta - \theta_0$  et  $\Delta Q = Q - Q_0$  ( $Q$ , l'humidité spécifique).

Le paramètre  $\zeta$  peut être exprimé en fonction du nombre de Richardson-bulk. Deardoff (1968) propose une formulation simple négligeant les conditions de stabilité :

$$\zeta \approx C \times R_{i_B} \quad (1-13)$$

Dans le cas d'une atmosphère instable, Grachev & Fairall (1997) suppose le coefficient  $C$  égal à 10. Dans le cas d'une atmosphère stable, Businger et al. (1971) proposent :

$$\zeta \approx \frac{C \times R_{i_B}}{1 - \alpha R_{i_B}} \quad (1-14)$$

avec  $\alpha \approx 5$  un coefficient empirique (Dyer, 1974).

Le paramètre de stabilité permet d'évaluer la turbulence atmosphérique pour établir le flux de diffusion turbulente des particules. Le déplacement des particules est régi par les processus d'advection, de diffusion et de turbulence en fonction des conditions de stabilité de la couche limite atmosphérique.

# Chapitre 2. L'aérosol marin

## 2.1 Introduction

Eriksson (1959) estime qu'entre  $10^9$  et  $10^{10}$  tonnes de particules d'aérosols marins sont produites par an sur l'ensemble de la planète. Ce chapitre se concentre sur les mécanismes de génération des particules d'aérosols marins et de leurs propriétés. L'objectif est d'apporter les connaissances théoriques nécessaires à l'amélioration de la modélisation de la source des aérosols marins dans les modèles de transport en zone côtière.

## 2.2 Interaction océan-atmosphère

Les aérosols marins sont issus de l'interaction entre le vent et les vagues. L'écoulement du vent au dessus de la mer est ralenti par la surface marine. Les frottements engendrent de la turbulence mécanique à l'origine de la formation et du développement des vagues. Ces vagues grandissent puis déferlent générant une mousse blanche appelée couverture moutonneuse. Les aérosols marins sont générés en partie dans cette zone blanche ou sont arrachés par le vent aux crêtes des vagues.

### 2.2.1 Le vent

#### a. Frottement du vent

L'écoulement de l'air au dessus de la surface marine est turbulent. Le frottement du vent peut être assimilé à un flux de quantité de mouvement, défini tel que :

$$\tau(z) = \rho_a \left( \overline{u'w'} - \nu \frac{\partial \bar{u}}{\partial z} \right) \quad (2-1)$$

où  $\nu = \mu / \rho_a$  est la viscosité cinématique de l'air,  $\tau(z)$  est la contrainte du vent.

Cette équation ne s'applique qu'à la couche de surface, dite la couche à flux constants. Elle correspond à une zone où la somme des flux moléculaires et des flux turbulents de la quantité de mouvement est constante. Ainsi, la contrainte totale du vent peut être supposée comme la

somme des contraintes induites par les vagues, de la contrainte turbulente et de la contrainte visqueuse.

En se plaçant au dessus de la sous-couche visqueuse ( $z \gg \delta$ ), la contrainte visqueuse est négligeable. L'équation (2-1) devient :

$$\tau = \rho_a \overline{u'w'} = cste \quad (2-2)$$

Le flux turbulent est donc définie par :

$$\overline{u'w'} = \frac{\tau}{\rho_a} = u_*^2 \quad (2-3)$$

où  $u_*$  est la vitesse de frottement du vent.

En appliquant la théorie des échanges turbulents, le flux turbulent peut également s'écrire :

$$\overline{u'w'} = -K \frac{\partial \bar{u}}{\partial z} \quad (2-4)$$

où  $K$  est le coefficient d'échange turbulent.

## b. Coefficient d'échange turbulent

Le coefficient d'échange turbulent  $K$ , ou coefficient de diffusivité turbulente, se détermine en effectuant une analogie avec la théorie cinétique des gaz (DeMoor 1983). L'approximation la plus courante de ce coefficient est selon Goroch et al. (1980) :

$$K = \frac{\kappa z u_*}{\Phi(z/L)} \quad (2-5)$$

avec la constante de Von Karman  $\kappa$ , l'altitude  $z$  et la vitesse de frottement  $u_*$ .  $L$  est la longueur de Monin-Obukhov et représente le paramètre de stabilité.  $\Phi(z/L)$  est une fonction universelle prenant en compte la stabilité et l'altitude. Lorsque l'atmosphère est neutre, cette fonction est de l'ordre de l'unité. Businger et al. (1971) l'ont définie dans les cas stables, neutres et instables, respectivement, de la manière suivante :

$$\Phi\left(\frac{z}{L}\right) = \begin{cases} 1 - 4.7z/L & z/L > 0 \quad (stable) \\ 1 & z/L = 0 \quad (neutre) \\ (1 - 4.7z/L)^{-1/4} & z/L < 0 \quad (instable) \end{cases} \quad (2-6)$$

Afin de mieux assurer la convection libre limite lorsque  $z \gg L$ , Troen & Mahrt (1986) ont modifié les coefficients du cas instable : la puissance a été ramenée à 1/3. Le facteur 4.7 a été augmenté à 7.

### c. Profil de vent au dessus de la mer

Le profil de vent au dessus de la mer est déterminé en introduisant le coefficient d'échange turbulent dans l'équation (2-4). L'expression devient :

$$\frac{\partial \bar{u}}{\partial z} = \frac{u_*}{\kappa z} \Phi(z/L) \quad (2-7)$$

Ainsi, le profil de vent dépend des conditions de stabilité atmosphérique.

#### Conditions de stabilité neutre

En atmosphère neutre, le profil vertical de la vitesse du vent s'écrit alors :

$$U(z) = \frac{u_*}{\kappa} \ln\left(\frac{z}{z_0}\right) \quad (2-8)$$

avec  $z_0$  la longueur de rugosité

#### Conditions stable ou instable

Lorsque l'atmosphère est stratifiée, le profil est décrit par :

$$U(z) = \frac{u_*}{\kappa} \left( \ln\left(\frac{z}{z_0}\right) - \Psi_u\left(\frac{z}{L}\right) \right) \quad (2-9)$$

où  $\Psi_u$  est l'intégrale d'une fonction universelle permettant de prendre en compte la stabilité et l'altitude.  $L$  est la longueur de Monin-Obukhov et  $z/L$  représente le paramètre de stabilité.

### d. Coefficient de traînée

Le coefficient de frottement (ou de traînée) traduit les effets du frottement de l'air sur l'eau en caractérisant les propriétés hydrodynamiques de la surface de la mer par une forte dépendance de l'état de mer (Toba et al., 1990). Il a une grande importance dans toutes les études prenant en compte l'interaction océan-atmosphère car il permet d'estimer la vitesse de frottement du vent ou de ramener la vitesse du vent  $U$  à une hauteur de référence de 10 mètres. Le coefficient de frottement  $C_D$  est défini par la relation suivante :

$$C_D = \frac{u_*^2}{U^2} \quad (2-10)$$

Le profil de vent au dessus de la mer dépend des conditions de stabilité atmosphériques et est proportionnel à la vitesse de friction. Par conséquent, le coefficient de frottement varie suivant les conditions de stabilité atmosphérique.

Dans le cas général, la combinaison des équations (2-9) et (2-10) donne :

$$C_D = \frac{\kappa^2}{\left( \ln\left(\frac{z}{z_0}\right) - \psi_u\left(\frac{z}{L}\right) \right)^2} \quad (2-11)$$

Le coefficient de traînée dépend donc des conditions de stabilité atmosphérique et de la longueur de rugosité. Ces paramètres étant difficilement mesurables, le coefficient de traînée est généralement déterminé à partir de formulations empiriques fonctions de la vitesse du vent (Geernaert et al., 1986; Fairall & Davidson, 1983; Donelan et al., 1997; Wu, 1980; Smith et al., 1992). Par ailleurs, plusieurs études ont montré une dépendance du coefficient avec d'autres paramètres comme ceux caractérisant le champ des vagues (Guan & Xie, 2004; Andreas, 2009; Ting et al., 2012).

## 2.2.2 Les vagues

Lorsque le vent souffle sur une mer initialement au repos, la surface de l'eau se ride. Lorsque le vent forçit, l'amplitude des ondulations augmente avec la vitesse du vent. Le champ de vague est composé d'un ensemble d'ondes de longueurs, amplitudes et vitesses différentes. La longueur de mer sur laquelle le vent souffle de façon relativement constante en vitesse et direction est appelée le fetch.

Lorsque le vent est présent sur le lieu du champ de vagues, on parle de « mer de vent ». Quand il cesse ou change de direction ou que le champ de vague résulte de la propagation d'un champ lointain, on parle de « houle ».

### a. Etat de développement

Lorsque le vent souffle sur une surface initialement au repos, le champ de vague est en développement, on parle de mer « jeune ». Lorsque la mer est pleinement développée, on parle alors de mer « âgée ». Un équilibre apparaît alors entre le transfert d'énergie du vent vers les vagues et la dissipation d'énergie par le déferlement.

Les caractéristiques du champ de vagues dépendent du fetch, de l'intensité et de la durée du vent. Lorsque le vent souffle suffisamment longtemps et constamment en intensité et en direction sur une zone de fetch, le champ de vagues atteint un équilibre. Le champ de vagues est alors stationnaire et se trouve en condition de « fetch limité » ou de « fetch infini ». Si le champ de vagues n'a pas atteint un équilibre à cause d'une durée d'action de vent trop courte, il est dit en condition de « durée limitée ».

Les modèles de prévision de l'état de mer utilisent généralement la hauteur significative  $H_s$  et la fréquence pic  $f_p$  pour décrire le champ de vagues. La fréquence pic correspond au mode principal,



c'est-à-dire la fréquence de l'onde dominante du champ de vagues et la hauteur significative correspond à la moyenne du tiers des vagues les plus hautes.

Cependant, l'état de développement de la mer peut être convenablement représenté par l'âge des vagues  $\zeta$  (Janssen 1994) que ce soit dans des conditions de fetch limité ou de durée limitée. L'âge des vagues est défini comme le rapport entre la vitesse de phase de l'onde dominante  $C_p$  et la vitesse du vent  $U_{10}$  ainsi que du cosinus de l'angle formé par les directions des vagues et du vent. Il peut également s'écrire par rapport à la vitesse de frottement  $u_*$  et s'appelle alors  $\zeta_*$ . Généralement, on suppose l'angle entre le vent et les vagues nul. On écrit alors :

$$\zeta = \frac{C_p}{U_{10}} \quad (2-12)$$

$$\zeta_* = \frac{C_p}{u_*} \quad (2-13)$$

où la vitesse de phase est reliée à la fréquence pic des vagues par la relation suivante :

$$C_p = \frac{g}{2\pi f_p} \quad (2-14)$$

Les mers jeunes sont caractérisées par une fréquence pic élevée, et donc, une petite vitesse de phase. Le rapport entre les vitesses est donc petit ( $\zeta \ll 1$  et  $\zeta_* \ll 30$ ). Le bilan d'énergie est essentiellement dominé par le transfert d'énergie du vent vers les vagues. Le champ de vagues est dit en phase croissante. Lorsque le vent persiste, la fréquence pic diminue. Les vagues dites alors « matures » sont caractérisées par un rapport de vitesse grand ( $\zeta \approx 1$  et  $\zeta_* \approx 30$ ). Le transfert d'énergie du vent vers les vagues s'équilibre avec la dissipation d'énergie par le déferlement des vagues.

## b. Le déferlement des vagues

Le déferlement a lieu lorsque la crête de la vague devient instable. La cambrure de la vague, définie comme le rapport de l'amplitude de la vague  $H$  et sa longueur d'onde  $L$ , atteint une valeur limite. Pour déterminer la cambrure critique, différentes théories ont été développées :

$$\text{En eau profonde (Michell 1893)} \quad \frac{H}{L} < 0.142 \quad (2-15)$$

$$\text{(Miche 1944)} \quad \frac{H}{L} < 0.14 \tanh\left(2\pi \frac{d}{L}\right) \quad (2-16)$$

$$\text{En eau peu profonde (Munk 1949)} \quad \frac{H}{d} < 0.78 \quad (2-17)$$

où  $L$  est la longueur d'onde des vagues,  $H$  l'amplitude des vagues et  $d$  la profondeur.

Le déferlement bathymétrique a essentiellement lieu en zone de surf qui est continuellement couverte de moutons. Lorsqu'on s'éloigne de la côte, le déferlement est plus épars. En pleine mer, les effets bathymétriques sont négligeables et le déferlement est dû à l'excès d'énergie transmis par le vent aux vagues. Les effets bathymétriques modifient le champ de vagues lorsque la profondeur devient inférieure à la moitié de la longueur d'onde. La diminution de la profondeur engendre une diminution de la longueur d'onde et une augmentation de l'amplitude de la vague et donc de sa cambrure. Le déferlement existe sous plusieurs formes dépendant essentiellement de la pente de la bathymétrie à l'approche de la côte. La Figure 2-1 représente les principaux types de déferlement.

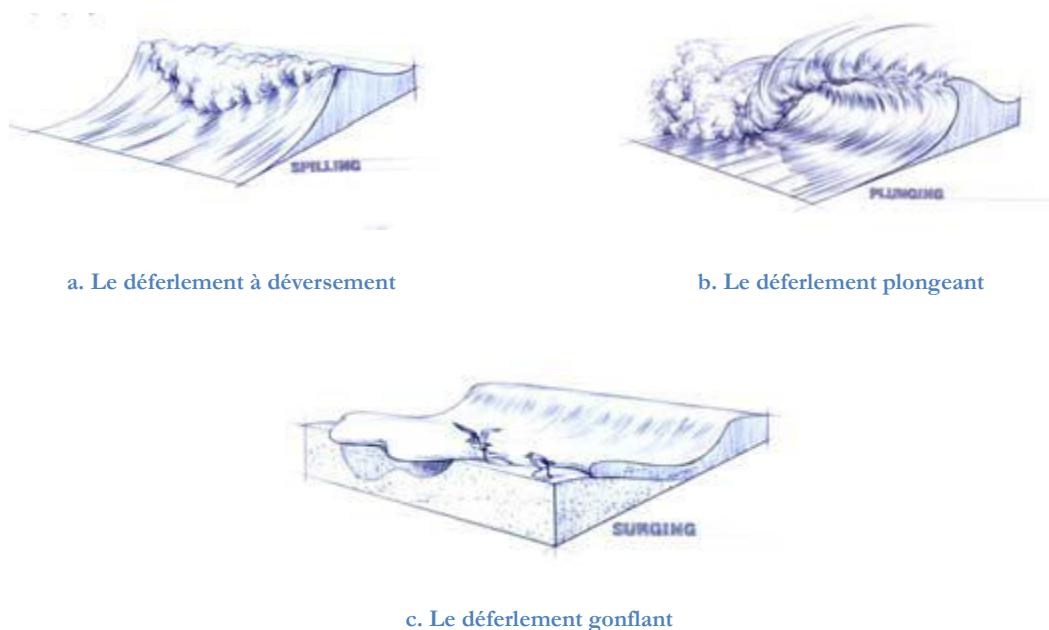


Figure 2-1: Les différents types de déferlement  
(Dessin tiré de Paul Robin, « Vague, l'Energie Magnifique »)

Il existe aussi d'autres zones de production caractéristiques. Le long du trait de côte, le déferlement dépend des ouvrages rencontrés (falaises, rochers, digues ou d'autres types d'obstacle). Ces ouvrages peuvent favoriser la production lorsque les vagues s'écrasent dessus, ou au contraire, les atténuer. Les zones de déferlement sont repérables par la zone blanche à la surface de l'eau appelée couverture moutonneuse.

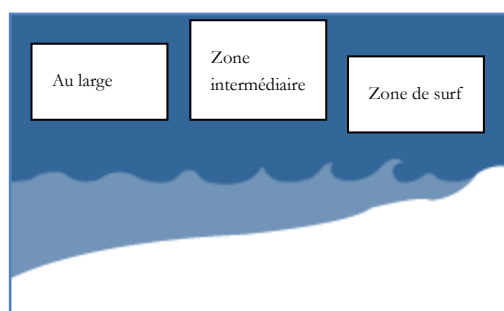


Figure 2-2: Les différentes zones de déferlement

### 2.2.3 Le taux de déferlement

La couverture moutonneuse est la zone blanche de la surface marine formée d'un panache de bulles remontant à la surface. Elles étaient entraînées en profondeur lors du déferlement des vagues (Figure 2-3).

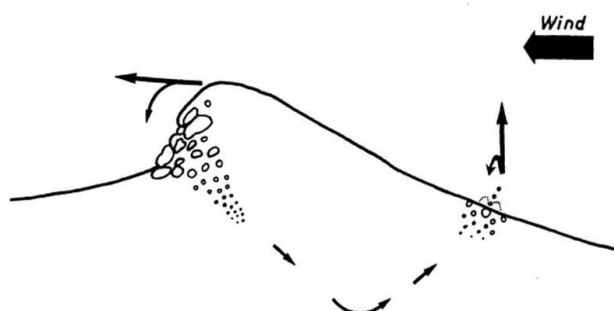


Figure 2-3 : Le déferlement à l'origine de la couverture moutonneuse (Resch 1982)

Elle intervient dans divers processus océanographiques, météorologiques et climatologiques. Elle est à l'origine de la formation des aérosols marins lors de l'éclatement des bulles. Par le biais des bulles, des échanges de gaz, de matière, de chaleur et d'humidité s'effectuent entre l'air et l'eau et de la matière organique est transportée (Lewis & Schwartz 2004; Massel 2007). Un des autres aspects de l'influence de la couverture moutonneuse au niveau du climat est son albédo élevé (Frouin et al. 2001). Ainsi, lors de la mesure de la couleur des océans par satellite, un facteur de correction doit être appliqué (Gordon 1997).

Le taux de déferlement est une grandeur mesurable, elle est définie comme le rapport entre la surface de la zone blanche sur la surface totale. Cependant, on distingue deux types de moutons : la couverture moutonneuse active (type A) et la couverture moutonneuse passive (type B). Le premier type est « jeune », il correspond au déferlement instantané des vagues. Le type B est « mature », il représente ce qui persiste lorsque la vague a déferlé. En termes de paramétrisation, la couverture moutonneuse peut s'exprimer en pourcentage ou en fraction. Généralement, les principales données de la littérature ont été acquises à l'aide de vidéos ou de photographies de la surface marine prises par avion, bateau ou du haut d'une tour. De nombreux paramètres affectent la couverture moutonneuse (Massel 2007), notamment ceux qui contribuent au déferlement des vagues, comme l'interaction des vagues entre-elles. De plus, les conditions météorologiques et environnementales peuvent influencer l'état de mer, la fréquence du déferlement et l'énergie du vent, et par conséquent la durée de vie et la surface de moutons.

Initialement, la variation de couverture moutonneuse a été exprimée en fonction de la vitesse du vent et deux coefficients empiriques  $\alpha$  et  $\beta$  par une relation de la forme :  $W(\%) = \alpha U_{10}^\beta$  (Blanchard 1963; Monahan & Ó Muircheartaigh 1980). Plus tard, certains résultats ont pu

montrer une dépendance entre la couverture moutonneuse et la stabilité de la basse couche atmosphérique (Monahan & Ó Muircheartaigh 1986; Monahan & Woolf 1989). Les relations obtenues regroupent la couverture moutonneuse active  $W_A$  et passive  $W_B$ , et prennent en compte, en plus de la vitesse du vent, la différence de température entre l'air et l'eau (*cf.* Annexe 1).

## 2.3 Générations des aérosols marins

Les particules d'aérosols marins issus de la production primaire sont générées par l'interaction entre le vent et les vagues. Ces gouttelettes d'eau salée peuvent être formées par des processus indirects (éclatement des bulles), des processus directs (écrêtage des vagues par le vent) ou d'autres moins courants comme les éclaboussures ou la respiration des algues.

### 2.3.1 Processus de génération

#### a. Ecrêtage par le vent

Le processus d'écèlement est d'ordre mécanique. Sous l'effet du vent, des gouttelettes sont arrachées aux crêtes des vagues. Ce processus apparaît lorsque le vent dépasse  $9 \text{ m.s}^{-1}$  (Monahan et al. 1983). La taille des particules générées est supérieure à  $20 \mu\text{m}$  (Monahan et al., 1983) et sont éjectées horizontalement (Koga 1986). Ce sont les premières gouttes formées.

#### b. Eclatement des bulles

En déferlant, les vagues entraînent des bulles d'air pouvant descendre jusqu'à une dizaine de mètres de profondeur. Ces bulles remontent vers la surface puis éclatent. La fragmentation de l'enveloppe de la bulle à l'interface air-mer forme des **gouttes de film**. La cavité créée par l'éclatement de la bulle se dégonfle et génère un jet vertical de gouttelettes appelées **gouttes de jet** (Figure 2-4). La hauteur d'expulsion des gouttes de jet est proportionnelle à la taille de la bulle parente (le coefficient de proportionnalité est égal à 100 pour  $D < 2 \text{ mm}$ , sinon il est plus petit) alors que les gouttes de film sont expulsées dans toutes les directions à environ 1 cm de hauteur (Resch et al. 1986).

L'aire d'une goutte de film est proportionnelle au carré du rayon de la bulle (Wu 2001) et leur nombre est fonction de la taille de la bulle. Le nombre de gouttes de jet produites est de l'ordre d'une dizaine par bulle. Les bulles de diamètre inférieur à 1.7 mm produisent principalement des gouttes de jet, et inversement, les bulles de diamètre supérieur à 1.7 mm engendrent

essentiellement des gouttes de film (Wu 1988). Selon Wu (1988), les bulles générées dans l'océan sont de petite taille, la majorité des aérosols marins sont donc des gouttes de jet et contribuent fortement aux échanges entre l'océan et l'atmosphère.

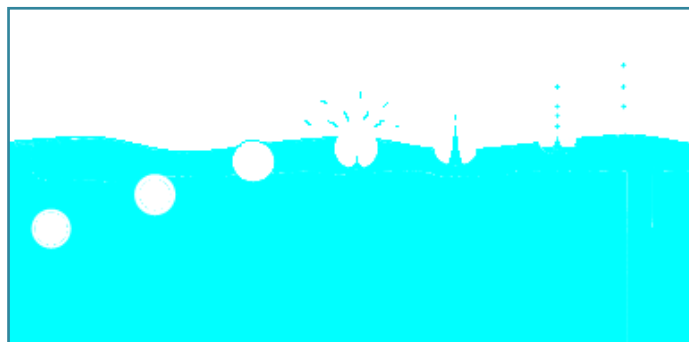


Figure 2-4 : Eclatement d'une bulle à l'origine des gouttes de jet et gouttes de film

### c. Différenciation des gouttes suivant la taille

De nombreux auteurs se sont intéressés à la différenciation de ces gouttes, notamment par la taille. Lorsque le diamètre des gouttes est inférieur à  $20\text{ }\mu\text{m}$ , ce sont certainement des gouttes issues de l'éclatement des bulles et lorsque leur diamètre dépasse  $550\text{ }\mu\text{m}$ , elles ne peuvent être issues que de l'écrêtage (Anguelova et al. 1999). Selon Koga (1981), les trois types de gouttes coexistent dans la gamme de  $50\text{--}500\text{ }\mu\text{m}$ . En règle générale, on considère que la majorité des gouttes de film a un rayon inférieur à  $1\text{ }\mu\text{m}$ , la majorité des gouttes de jet a un rayon supérieur à  $1\text{ }\mu\text{m}$  et les gouttes issues de l'écrêtage sont généralement plus grosses que  $20\text{ }\mu\text{m}$ .

## 2.3.2 De la formation à l'élimination

### a. Propriétés physiques

Les particules submicroniques résident dans l'atmosphère de plusieurs jours à plusieurs semaines. La vitesse de chute d'une particule de  $1\text{ }\mu\text{m}$  est de l'ordre de  $0.01\text{ cm.s}^{-1}$ . Elles peuvent être transportées par le vent sur plusieurs centaines de kilomètres et se répartissent verticalement dans la CLAM entière. Les effets de la gravité sont négligeables, elles sont principalement éliminées par dépôt humide. Elles interviennent dans les processus de chimie atmosphérique et dans la formation des nuages comme noyaux de condensation (CCN, de l'anglais Cloud Condensation Nuclei) (Lewis & Schwartz 2004).

Les particules de taille comprise entre  $1$  et  $25\text{ }\mu\text{m}$  résident de quelques minutes à plusieurs jours dans l'atmosphère. Elles sont transportées par le vent de quelques mètres à plusieurs kilomètres et leur répartition verticale varie en fonction de leur taille. Elles sont éliminées par dépôt. Elles

interviennent essentiellement dans les processus d'atténuation du rayonnement (Lewis & Schwartz 2004).

Les particules supérieures à 25  $\mu\text{m}$  disparaissent au bout de quelques secondes. Elles atteignent difficilement des hauteurs supérieures à 10 m car elles sont fortement soumises à la gravité. Une particule de 25  $\mu\text{m}$  possède une vitesse de chute de l'ordre de 6  $\text{cm.s}^{-1}$ . Elles jouent un rôle dans les échanges de chaleur latente et de chaleur sensible entre l'océan et l'atmosphère par condensation et évaporation (Mestayer & Lefauconnier 1988).

## **b. Equilibre des gouttelettes avec l'humidité relative**

En raison de leur hygroscopicité, les particules marines ont tendance à atteindre leur rayon d'équilibre en relation avec l'humidité ambiante par condensation ou évaporation d'eau. Ces deux phénomènes peuvent être considérés comme symétriques car ils font intervenir un processus de changement d'état traduisant un transfert de masse entre le milieu environnant et la particule. Ils engendrent donc une modification de la taille, de la masse, de la concentration en soluté et du pH des gouttelettes.

Le rayon d'équilibre est principalement fonction de l'humidité relative pour une masse sèche donnée. Le facteur de grossissement  $f$  permet de quantifier l'augmentation ou le rétrécissement de la taille des particules en fonction de l'humidité relative  $RH$ . Il est entre autre utilisé pour ramener la taille des particules à une humidité standard qui est généralement prise à 80% (Fitzgerald 1975).

$$f = 0.81 \times \exp \frac{0.066 \times RH/100}{1.058 - RH/100} \quad (2-18)$$

En général, on admet :

$$r_0 \approx 2 r_{80} \approx 4 r_d \quad (2-19)$$

où  $r_0$  est le rayon d'équilibre des gouttelettes lors de leur formation ce qui correspond à une humidité relative de 98.8%,  $r_{80}$  est le rayon d'équilibre pour une humidité relative standard de 80% et  $r_d$  est le rayon sec, soit en l'absence d'humidité.

## **c. Evolution de la composition**

Au moment de leur formation, les gouttelettes d'aérosols marins ont la même composition chimique que l'eau de mer. Elles sont donc principalement constituées de sels et leur pH varie entre 7 et 8.7 (Keene et al. 1998). Le chlorure de sodium ( $\text{NaCl}$ ) constitue en majorité l'ensemble des sels de mer, soit environ 85% (Blanchard 1983). Les sulfates ( $\text{CaSO}_4$ ,  $\text{MgSO}_4$ ) et les chlorures ( $\text{MgCl}_2$ ,  $\text{KCl}$ ) mélangés au chlorure de sodium ( $\text{NaCl}$ ) entraînent une forte hygroscopicité des

particules d'aérosols (I. N. Tang et al. 1997). Les points de déliquescence<sup>1</sup> des  $\text{MgCl}_2$ ,  $\text{NaCl}$  et  $\text{MgSO}_4$  sont de 33%, 75% et 88%, respectivement (Warneck & Wurzinger 1988). L'une des principales conséquences de la forte hygroscopicité des aérosols marins est leur faculté, sous certaines conditions, de devenir plus facilement des noyaux de condensation (CCN) que les autres types d'aérosols.

Dans l'atmosphère, les aérosols s'enrichissent en matière organique (Blanchard 1963; Middlebrook et al. 1998), en iode (Murphy et al. 1997), en organisme vivant (Blanchard 1983) ou encore en neuston<sup>2</sup> (Zaitsev & Liss 1997). De plus, des réactions chimiques hétérogènes et multiphasiques peuvent survenir entre les gouttelettes d'aérosol et les composés atmosphériques entraînant une modification de la composition chimique de la gouttelette.

Selon Keene et al. (1998), les aérosols marins peuvent s'acidifier dans les 15 minutes qui suivent leur formation. Lorsque l'alcalinité est inférieure à 7, l'aérosol marin peut également subir une déchloronisation (Sellegrì et al. 2001), c'est-à-dire, les ions chlorures dans les aérosols sont remplacés par des nitrates et sulfates qui s'accumulent dans les gouttelettes (Murphy et al. 1998). Ce phénomène s'observe également avec les ions bromures (Mozurkewich 1995; Sander & Crutzen 1996). La fraction des différents ions varie suivant l'âge des aérosols. Les aérosols « âgés » sont alors plus solubles et seront potentiellement plus aptes à devenir des CCN en raison de leur élément chimique à forte hygroscopicité. Cependant, la quantité d'ions sodium reste inchangée dans une atmosphère marine propre, c'est-à-dire, sans aérosols continentaux et/ou anthropogéniques. Ainsi, la déhalogénisation et l'enrichissement en sulfates (non- $\text{SO}_4^{2-}$ ) peuvent être déterminés à partir de la concentration en sodium et des ratios de concentration de l'eau de mer (Sellegrì et al. 2001). Ces transformations chimiques sont plus prononcées en zone côtière qu'en pleine mer en raison de l'abondance des acides contenus dans les masses d'air continentales.

## 2.4 Répartition verticale des aérosols marins dans la CLAM

La connaissance du profil vertical de concentration d'aérosols marins est essentielle. Elle informe sur la quantité totale d'aérosols dans une colonne d'air et sur les concentrations à diverses altitudes. Plusieurs auteurs ont trouvé expérimentalement une décroissance de la concentration en particules en fonction de l'altitude (Blanchard & Woodcock 1980). Cette décroissance est d'autant plus accrue pour les grosses particules qui sont fortement soumises à la gravité. De plus,

---

<sup>1</sup> Capacité d'un corps à absorber ou adsorber l'humidité

<sup>2</sup> Organisme vivant à la surface de l'océan

l'ascension des particules est principalement influencée par la turbulence et la stratification atmosphérique. Les mouvements ascendants sont favorisés lors d'un état instable.

L'équation du profil vertical de concentration à un état stationnaire dans la couche de surface est obtenue sous l'hypothèse d'un flux vertical moyen nul. Elle est connue sous le nom de équation de Rouse et s'exprime de la manière suivante (Rouse 1937) :

$$K \frac{\partial N}{\partial z} = -v_g N \quad (2-20)$$

Où  $v_g$  est la vitesse terminale de chute,  $K$  le coefficient d'échange turbulent et  $N$  la concentration en particules.

La solution de cette équation est de la forme :

$$\frac{N(z)}{N(z_1)} = \exp \left\{ - \int_{z_1}^z \frac{v_g}{K} dz \right\} \quad (2-21)$$

Où  $z_1$  est une hauteur donnée.

Dans le cas d'une atmosphère neutre (pour la stabilité),  $K$  est directement proportionnel à la hauteur  $z$  ce qui donne (Toba 1965) :

$$\frac{N(z)}{N(z_1)} = \exp \left\{ - \frac{V_g}{\kappa u_*} \ln \left( \frac{z}{z_1} \right) \right\} \quad (2-22)$$

Andreas (2007) propose, dans le cas d'un état stationnaire et d'une atmosphère neutre, la distribution verticale suivante :

$$\frac{dN(z, r_{80})}{d \log r_{80}} = \frac{dN(z_{ref}, r_{80})}{d \log r_{80}} - \left( \frac{1}{\kappa u_*} \right) \times \frac{dF}{d \log r_{80}} \times \ln \left( \frac{z}{z_{ref}} \right) \quad (2-23)$$

Dans la CLAM, on suppose généralement que la relation entre l'altitude et la concentration est une décroissance exponentielle (Preobrazhenskii 1973; Edson et al. 1996). Elle s'exprime de la manière suivante :

$$\frac{N}{N_0} = \exp \left( - \frac{z}{H} \right) \quad (2-24)$$

$N$  est la concentration en particules à l'altitude  $z$ ,  $N_0$  est la concentration à une hauteur de référence et  $H$  un paramètre d'échelle variable. (Ruprecht Jaenicke 1993) propose  $H = 900$  m dans la CLAM. Blyth et al. (1980) suppose qu'il correspond à la hauteur de mélange de la CLAM. Selon Park et al. (1990), la hauteur de mélange peut être définie comme cent fois la vitesse du vent à 10 m. Cependant, il est évident que le paramètre d'échelle varie en fonction de la taille des



particules et des conditions de stratification thermique. Plus les particules sont de petite taille, plus le profil vertical est droit.

Lorsque l'on intègre la concentration suivant la verticale, l'équation (2-24) devient :

$$\int_0^z \frac{N}{N_0} = H \times \left(1 - \exp\left(-\frac{z}{H}\right)\right) \quad (2-25)$$

Ainsi, deux tiers des aérosols se situent entre la surface et l'altitude H.

## 2.5 Flux de production de particules marines

Il existe de nombreuses méthodes permettant de déterminer le flux de production d'aérosols marins effectif ou à l'interface air-mer (De Leeuw et al. 2011; Lewis & Schwartz 2004). Ceci engendre une grande diversité de formulation du flux de production.

### 2.5.1 Méthodes de détermination du flux de production

Le choix de la méthode se base sur les hypothèses émises (stationnarité, homogénéité horizontale, etc.), les conditions de mesures (distance par rapport aux côtes, hauteurs de mesures, vent, etc.), le type de particules (type de gouttes, taille des particules, etc.) et/ou le matériel de mesure utilisé (vidéo, impacteur, sonde granulométrique, etc.).

#### a. Pour $r_{80} \leq 1 \mu\text{m}$

Les méthodes déterminant le flux à l'interface air-mer sont équivalentes à celles le calculant à 10 m au dessus du niveau de la mer (flux efficace) car le gradient vertical de concentration tend vers 0 dans la première dizaine de mètres. En général, on utilise les méthodes suivantes :

- La « **Concentration Buildup Method** » (Reid et al. 2001) détermine le flux de production efficace à partir de la concentration en particules intégrée sur une colonne d'air et croissante suivant une distance x parcourue le long du vent.
- La « **Micrometeorological Method** » où le flux effectif est déterminé à partir des mesures de fluctuation ou du gradient de concentration dans la couche limite de surface (CLS). Le flux de particules d'aérosols se calcule à partir de la méthode des gradients ou de corrélation turbulente.

- La « **Statistical Wet Deposition Method** » suppose que le seul mécanisme d'élimination des particules dans l'atmosphère est le dépôt humide et que les précipitations lessivent quasiment la totalité des particules.

### b. Pour $1 \mu\text{m} \leq r_{80} \leq 25 \mu\text{m}$

Le flux à l'interface est plus grand que le flux efficace. Dans le cas du flux efficace on préférera les méthodes :

- La « **Steady State Dry Deposition Method** » suppose qu'un équilibre local est atteint entre le flux de dépôt sec et le flux effectif de production. Le flux de production est déterminé à partir des mesures de concentration moyenne en fonction de la taille de la particule à une hauteur de référence et à partir d'une vitesse de dépôt.
- La « **Concentration Buildup Method** », décrite dans le paragraphe précédent, peut également être utilisée pour cette gamme de taille de particules.

Pour le flux à l'interface, on choisira les méthodes suivantes, mais celles-ci ne prennent pas en compte l'écrêtage :

- La **méthode du Whitecap** (ou couverture moutonneuse), suggérée par Blanchard (1963), détermine le flux interfacial de production à partir de la couverture moutonneuse et le flux de production en particules par unité de surface de whitecap.
- La **méthode des bulles**, proposée par Eriksson (1959), permet de déterminer le flux à l'interface de gouttelettes issues de l'éclatement de bulles. Ceci implique la connaissance de la distribution en taille des bulles et le nombre de gouttes de jet et de film produites lors de l'éclatement d'une bulle d'une taille donnée.

La méthode suivante peut être également utilisée mais est assez limitée :

- La **méthode d'impaction verticale** où un collecteur horizontal est placé au niveau de l'interface air-mer ( $< 1 \text{ m}$ ) et mesure le taux d'impaction des particules. Le flux de production est ensuite directement calculé à partir de ces mesures.

### c. Pour $r_{80} \leq 25 \mu\text{m}$

Le flux à l'interface est prépondérant, peu de particules dépassent quelques mètres de hauteur. De plus, les particules issues de l'écrêtage sont nettement majoritaires. Les méthodes les plus adaptées sont :

- L'« **Along Wind Flux Method** » détermine le flux de production en particules à l'interface air-mer à partir de mesures de flux effectuées le long du vent et/ou de mesures de concentrations effectuées près de la surface (typiquement à une hauteur inférieure à  $1 \text{ m}$ ), en laboratoire ou en mer.

- La **méthode d'observation directe** où le flux de production en particules à l'interface air-mer est déterminé à partir de photographies ou de vidéos des gouttelettes éjectées de la surface de la mer.
- La **méthode d'impaction verticale**, décrite dans le paragraphe ci-avant, peut être également utilisée pour cette gamme de taille de particules.

#### d. Méthode utilisée dans l'étude

Pour notre étude, nous avons développé une méthode originale qui consiste à estimer le flux de production à partir de comparaison entre les sorties d'un modèle numérique et des mesures. Les conditions d'entrée du modèle doivent être similaires aux conditions de mesure. Les coefficients de la fonction source sont modifiés jusqu'à ce que les sorties du modèle soient très proches des mesures. Le facteur de confiance entre les sorties du modèle et les mesures doit correspondre au facteur de fiabilité des mesures qui est de l'ordre de 3 (De Leeuw, 2000). La fonction source est ensuite validée avec d'autres mesures.

Cette méthode s'adapte à toutes les tailles de particules à condition que le modèle prenne en compte les processus physiques spécifiques aux particules étudiées. Cette méthode suppose le modèle fiable et permet de décrire le flux en fonction de nombreux paramètres.

### 2.5.2 Fonctions Sources

La littérature comporte un ensemble important de fonctions sources pouvant être très différentes les unes des autres en termes de formes (gaussiennes, polynômes, etc.), de domaine de validité (zone de surf, taille des particules, vent, etc.). La plupart d'entre elles dépend de la vitesse du vent et de la taille des particules. La taille des particules s'exprime en rayon ou diamètre à différentes humidités relatives : soit à la formation de la particule c'est-à-dire  $RH=98.8\%$  ( $r_0$  ou  $D_0$ ), soit normalisé à  $80\%$  ( $r_{80}$  ou  $D_{80}$ ), soit à l'humidité ambiante ( $r_{amb}$  ou  $D_{amb}$ ) ou encore à  $RH=0\%$  ( $r_d$  ou  $D_d$ ). Le tableau en annexe 3 regroupe les fonctions sources les plus courantes en précisant la méthode utilisée ainsi que le domaine de validité (Lewis & Schwartz 2004; O'Dowd & De Leeuw 2007; De Leeuw et al. 2011) .

La Figure 2-5 représente le flux de production établi à partir de différentes fonctions sources en fonction du rayon des particules pour un vent de  $8 \text{ m.s}^{-1}$ . Cette figure montre la différence entre les flux pour des mêmes conditions de vent et des particules de même taille selon la formule de la fonction source utilisée. En effet, pour des particules de  $1 \mu\text{m}$ , on peut observer un facteur supérieur à 100 entre les flux. D'une part ces différences viennent de la méthode de détermination du flux utilisée, on observe un facteur allant jusqu'à 10 entre le flux déterminé par Lewis & Schwartz (2004) avec la « dry deposition method » et la « statistical wet deposition

method ». D'autre part, ces variations peuvent être dues aux mesures servant à étalonner les fonctions sources qui sont effectuées en laboratoire ou *in situ*. D'une région à l'autre, les conditions météorologiques et océanographiques changent (température de l'air et de l'eau, salinité, champ de vagues, vent), la production en particules issues de l'interaction vent-vagues n'est donc pas la même.

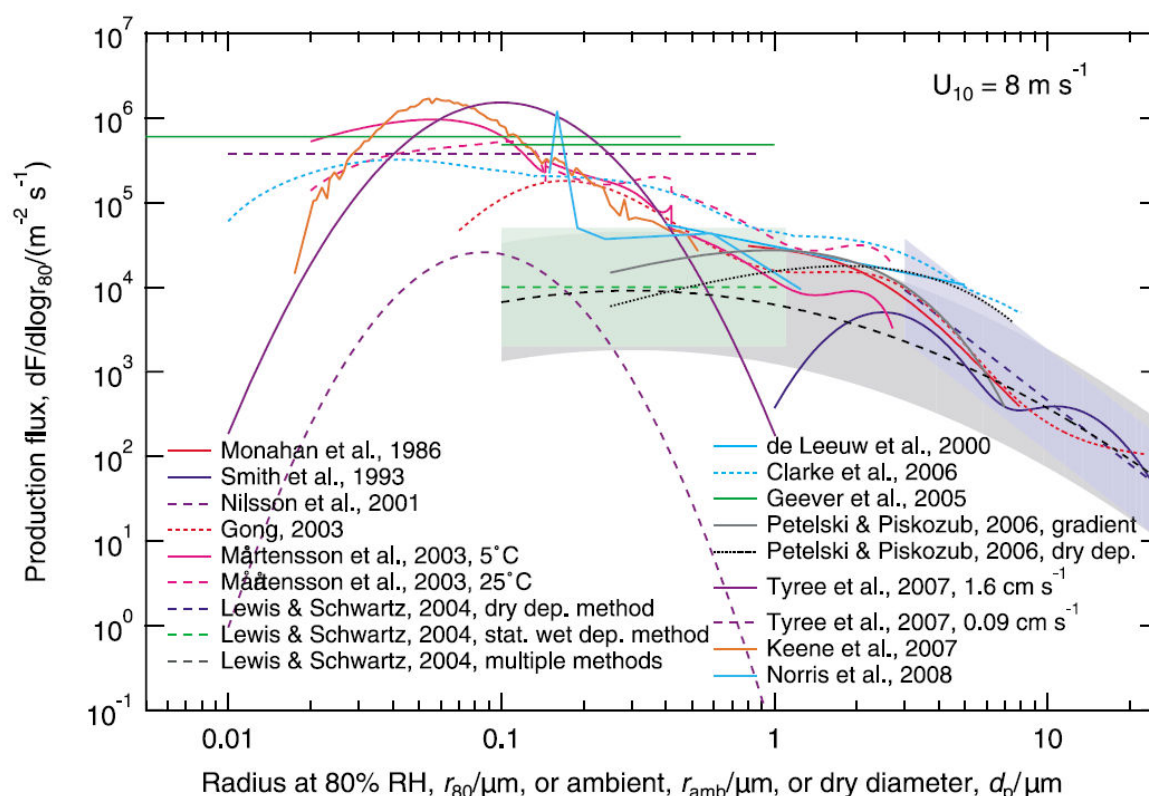


Figure 2-5 : Flux de production des aérosols marins en fonction de la taille des particules calculés à partir de diverses fonctions sources, pour un vent de 8 m.s<sup>-1</sup> (De Leeuw et al. 2011)

## 2.6 Modélisation de la concentration en aérosols

La prévision et la surveillance de la qualité de l'air nécessitent l'utilisation de modèles de transport de particules atmosphériques. Les modèles de chimie-transport MOCAGE, CHIMERE et WRF-Chem sont les plus couramment utilisés. Ils permettent de cartographier la concentration en particules à grande échelle et à échelle régionale. Ils prennent en compte différentes sources de particules (marine, anthropique, *etc.*). Cependant, ils nécessitent une initialisation par des modèles spécifiques à chaque source de particules (MEGAN, MOZART, INCA, GOCART, *etc.*), sauf pour la source marine qui est directement déterminée à partir de fonction source. Le modèle de grande échelle DREAM-SALT est spécifique aux aérosols marins. Dans l'objectif d'estimer uniquement la composante marine de l'échelle régionale à locale, le MIO a développé un modèle

paramétrique MEDEX pour la zone côtière Méditerranéenne et un modèle numérique MACMod. Ces modèles permettent entre autres d'estimer la concentration en aérosols marins en fonction du vent et du fetch.

## 2.6.1 Modèles de chimie-transport

### a. MOCAGE

Le Modèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle (MOCAGE) a été développé au sein de Météo-France afin de modéliser la chimie et le transport des particules aux échelles stratosphériques, troposphériques et régionales, en 3-D. Il est utilisé en tant que modèle de prévision de la qualité de l'air pour les polluants suivants : l'ozone, dioxyde d'azote et les particules. Lorsqu'un polluant est rejeté accidentellement dans l'atmosphère, la version accident du modèle permet de modéliser le transport et la dispersion du polluant. Quant à la version climat, elle permet l'étude de l'impact de la chimie sur le climat.

### b. CHIMERE

Le modèle CHIMERE est un modèle eulérien de chimie-transport développé au Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD). Il traite à la fois les espèces gazeuses et les aérosols. Il permet d'estimer les champs de concentrations chimiques sur des grandes zones urbanisées avec une résolution minimale de l'ordre de quelques kilomètres. Il est utilisé à la fois pour l'étude de processus, l'analyse climatologique à l'échelle régionale et la prévision opérationnelle. Il nécessite un modèle d'entrée pour les forçages météorologiques tel WRF ou MM5. Le flux de production des aérosols marins est calculé grâce à la fonction source de Monahan et al. (1986).

### c. WRF-Chem

WRF-Chem est issu du couplage entre le modèle Weather Research and Forecasting (WRF) et le module Chemistry. Il est développé par la NOAA en collaboration avec de nombreux partenaires scientifiques (universités, NCAR, PNNL, EPA). Il est couramment utilisé pour l'étude de la qualité de l'air à l'échelle régionale, des interactions entre la chimie et les nuages. Il est destiné à simuler les émissions, le transport, le mélange et les transformations chimiques des gaz et des aérosols dans l'atmosphère. Le modèle prend en compte les aérosols marins, leur flux de production est calculé grâce à la fonction source de Monahan et al. (1986).

## 2.6.2 Modèles spécifiques aux aérosols marins

### a. DREAM-Salt

Le modèle DREAM-Salt, développé à l'Université de Tel-Aviv (TAU), génère des prévisions quotidiennes opérationnelles de la concentration massique en aérosols marins sur la Méditerranée (Nickovic et al. 2007; Kishcha et al. 2011). Sa résolution horizontale est de  $0.3^\circ$  sur 24 niveaux verticaux. Le flux de production d'aérosols marins est défini à la frontière inférieure du domaine par la fonction source d'Erickson et al. (1986). Le spectre de taille des particules varie de 1 à  $8.5 \mu\text{m}$ . Les effets de l'humidité relative sur la production et la distribution en taille des particules n'est pas prise en compte. Kishcha et al. (2011) a montré que les performances du modèle sont correctes en comparant les sorties du modèle à des mesures effectuées sur l'île de Lampedusa, de 2007 à 2008, et en supposant des conditions de pleine mer.

### b. Le modèle paramétrique MEDEX

MEDEX (Piazzola et al. 2003; Piazzola & Kaloshin 2005) est un modèle aérosolaire empirique destiné à l'estimation de la concentration en particules d'aérosols marins en fonction de la vitesse du vent et du fetch. Ce modèle se base sur des analyses statistiques de mesures effectuées sur la station de Porquerolles entre 2000 et 2001. Le modèle se présente sous la forme d'une somme de quatre fonctions log-normales :

$$\frac{dN(r)}{dr} = \sum_{i=1}^4 \frac{A_i}{f} \cdot \exp \left[ -C_i \left( \ln \left( \frac{r}{f r_{0i}} \right) \right)^2 \right] \quad (2-26)$$

Où les rayons modaux ont pour valeur :  $r_{01} = 0.03 \mu\text{m}$ ,  $r_{02} = 0.24 \mu\text{m}$ ,  $r_{03} = 2 \mu\text{m}$  et  $r_{04} = 10 \mu\text{m}$ .

$f$  représente le facteur de grossissement des particules dû aux variations d'humidité relative (cf. section 2.3.2b),  $A_i$  est l'amplitude des modes et  $C_i$  l'inverse de deux fois l'écart type au carré. Ces coefficients, propres à la zone côtière méditerranéenne, sont fonction de la vitesse du vent à 10 m,  $U_{10}$ , et du fetch  $X$ . Ils se présentent sous la forme suivante :

$$\begin{aligned} A_1 &= -24350 \ln X + 345901 & C_1 &= -0.19 \ln X + 3.2 \\ A_2 &= 10^{[(0.03 \ln X - 0.282)U - 0.385 \ln X + 5.25]} & C_2 &= -0.148 \ln X + 2.883 \\ A_3 &= 10^{[(0.045 \ln X - 0.398)U - 0.47 \ln X + 3.25]} & C_3 &= -295 \ln X + 4.55 \\ A_4 &= 10^{[(0.0095 \ln X - 0.0593)U - 0.1424 \ln X - 4.3417]} & C_4 &= 10 \end{aligned} \quad (2-27)$$

La Figure 2-6 représente la concentration estimée par MEDEX et une série de mesures (navire Atalante, MIRAMER 2008) en fonction de la taille des particules dans les cas de fetch court et vent faible (a) et de fetch infini et vent moyen (b).

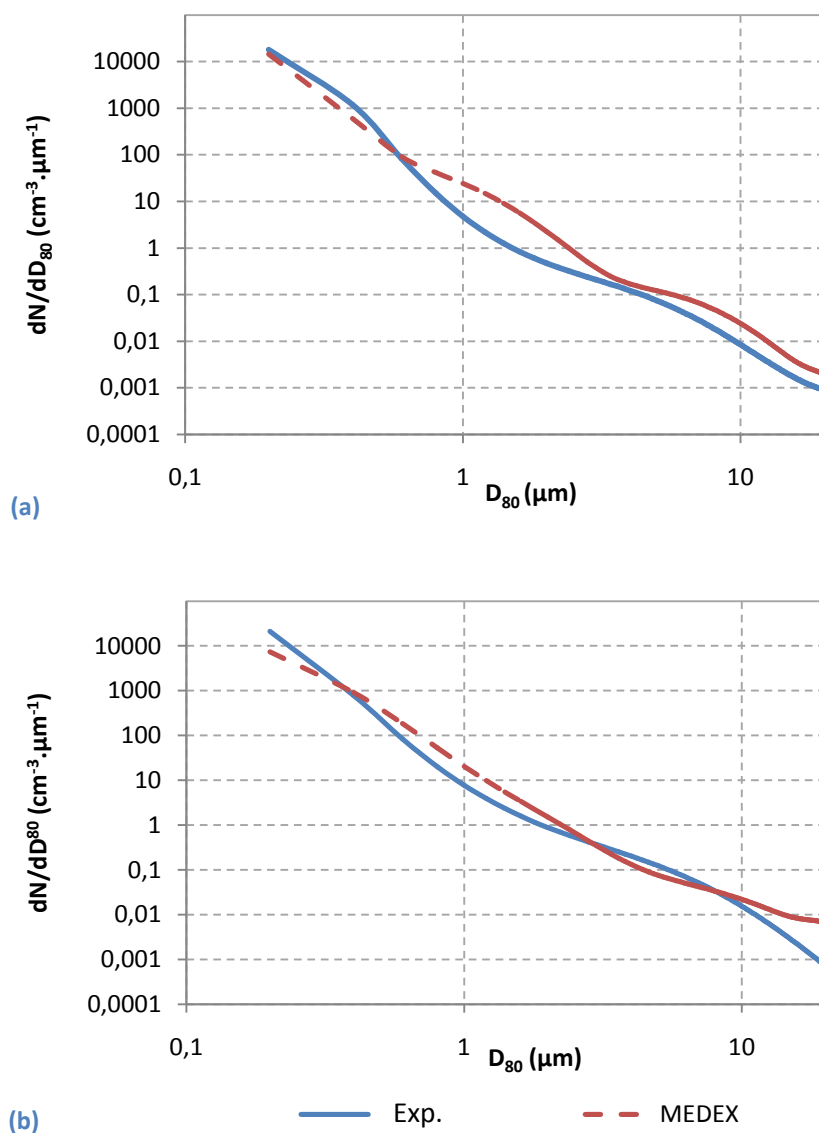


Figure 2-6 : Concentrations calculées par MEDEX (pointillé rouge) et mesurées (trait plein bleu) sur l'Atalante (MIRAMER 2008) en fonction du diamètre des particules : (a)  $X=7$  km et  $U=5$   $\text{m.s}^{-1}$  et (b)  $X=250$  km et  $U=10$   $\text{m.s}^{-1}$

Ce modèle paramétrique pour la région méditerranéenne a été couplé avec un modèle météorologique afin de décrire la variation horizontale de concentration en particules marines (Blot 2009). Cependant, MEDEX suppose la stationnarité atteinte.

Ces coefficients ont été revisités pour l'île de La Réunion où les distributions granulométriques d'aérosols diffèrent de la région méditerranéenne. Les mesures expérimentales du site de « Saint Denis » de la campagne de La Réunion 2012 ont permis d'établir les formulations suivantes dans des conditions de fetch infini :

$$\begin{aligned}
A_1 &= 30000 & C_1 &= 1.1 \\
A_2 &= 10^{[0.1U+1]} & C_2 &= 1 \\
A_3 &= 10^{[0.19 U-2]} & C_3 &= 1.2 \\
A_4 &= 10^{[0.05 U-2.7]} & C_4 &= 10
\end{aligned} \tag{2-28}$$

### 2.6.3 Le modèle numérique MACMod

Le modèle MACMod (Marine Aerosol Concentration Model), développé au MIO (Tedeschi & Piazzola 2011) simule la production et le transport de particules d'aérosols marins en zone côtière. C'est un modèle instationnaire et bidimensionnel. Il utilise un terme source qui traduit le flux de production de particules marines à l'interface air-mer. Le choix de la fonction source est fondamental car le flux de production est très variable suivant les conditions océano-météorologiques et la zone d'étude.

Ce modèle est décrit plus précisément dans le chapitre 4. C'est l'outil numérique principal utilisé dans cette thèse.





## Partie 2 : Modélisation

Cette deuxième partie s'articule autour de l'amélioration des outils de modélisation du transport et de génération des aérosols marins en zone côtière. Le laboratoire MIO développe un modèle destiné à simuler la production et le transport des aérosols marins dans la CLAM, MACMod. En effet, un des objectifs de ce travail de thèse a été d'améliorer les performances de MACMod. En comparant les simulations et des mesures, nous constatons un facteur d'erreur pouvant aller jusqu'à 10. Grâce à l'exploitation de données expérimentales acquises durant la campagne de mesures MIRAMER et l'étude théorique effectuée dans la première partie, nous avons déterminé une nouvelle fonction source adaptée à la région méditerranéenne nord-occidentale. La fonction source étant étalonnée avec des mesures en mer, le modèle peut tenir compte implicitement de particules d'origine anthropique et/ou terrigène. Ainsi, nous avons comparé les sorties du modèle dans trois conditions d'origines de masses d'air aux mesures effectuées durant la campagne Porquerolles 2007, où les échantillons avaient subi des analyses chimiques (Na, Cl, OC, EC, *etc.*). Par ailleurs, pour résoudre les problèmes de conditions limites liés à la présence de particules (marines ou continentales) à la frontière amont du domaine de calculs, nous avons mis en place des profils verticaux de concentration.



# Chapitre 3. Instrumentation et mesures

## 3.1 Introduction

L'Institut Méditerranéen d'Océanologie (MIO) a participé à plusieurs campagnes de mesures se déroulant en zone côtière méditerranéenne nord occidentale destinées à caractériser les aérosols transitant dans la région toulonnaise. Nous nous intéressons plus particulièrement à deux campagnes : MIRAMER 2008 et Porquerolles 2007.

La campagne de mesures MIRAMER a été organisée dans le cadre du projet PEA MIRA par l'ONERA du 18 au 28 mai 2008 dans la baie de Toulon-Hyères. Son principal objectif était d'acquérir des images infrarouges de la surface de la mer et de les caractériser dans des contextes océanographique et atmosphérique (notamment par la présence d'aérosols), le but étant de valider et d'étendre le modèle de génération d'image de mer du code « ONERA Matisse ». Pour ce faire, une collaboration a été mise en place avec le laboratoire MIO. Le navire océanographique Atalante et la station de Porquerolles ont été équipés de capteurs mesurant les distributions en taille d'aérosols, des paramètres météorologiques et océanographiques ainsi que de différents types de radiomètres. Des données océanographiques ont été acquises par une bouée ancrée au sud de Porquerolles.

La campagne de mesures Porquerolles 2007 s'est déroulée du 5 au 29 mai 2007 sur la station de Porquerolles. L'objectif de la campagne était de caractériser chimiquement et physiquement les particules d'aérosols submicroniques en Méditerranée nord-occidentale. Pour ce, une collaboration a été mise en place entre le MIO et le laboratoire de Météorologie Physique de Clermont-Ferrand (LaMP). La station a été équipée d'impacteur en cascade dont les filtres ont été analysés par le LaMP.

## 3.2 La région méditerranéenne nord occidentale

### 3.2.1 Les vents dominants

Les particules sont susceptibles d'être transportées loin de leur source d'origine par les vents. Différents régimes de vent existent tels que Le Mistral, la Tramontane et le Levant qui sont des vents forts, régionaux et caractéristiques de la région nord-occidentale méditerranéenne. Ces vents peuvent générer des vagues de hauteur importante et de ce fait être à l'origine d'une forte production en aérosols marins. D'autres vents plus locaux soufflent sur cette région, tels les régimes de brises (Figure 3-1).

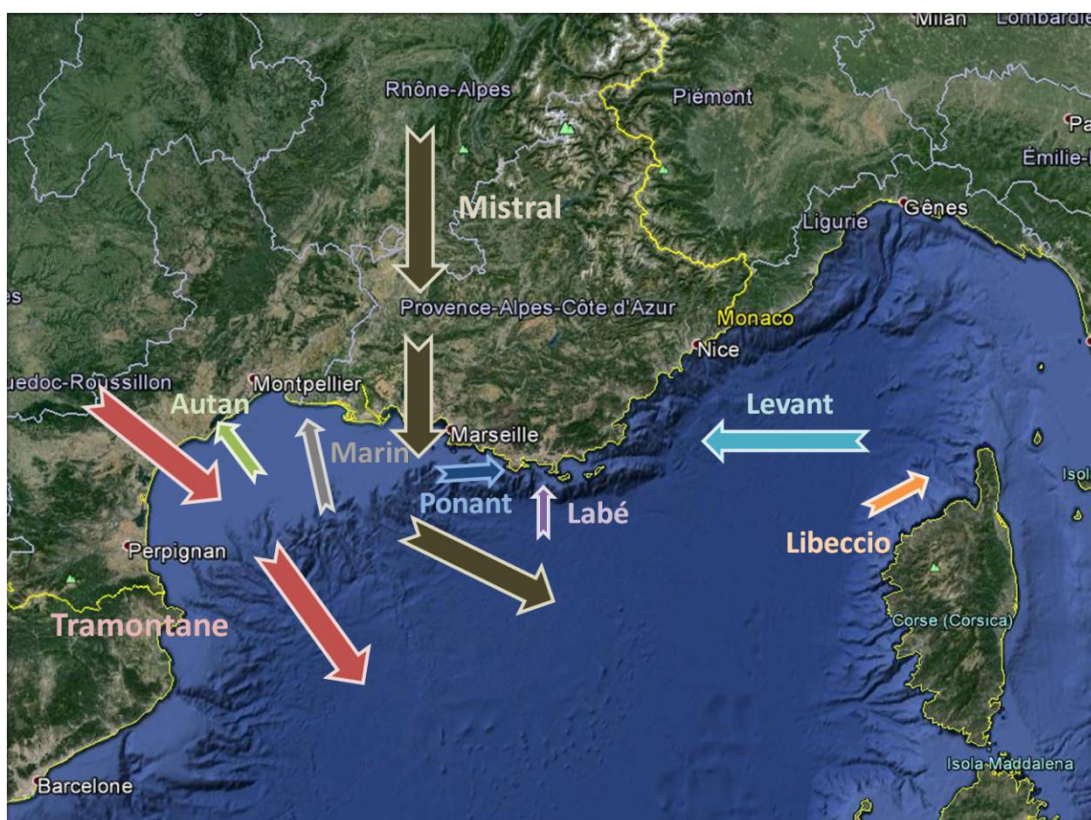


Figure 3-1 : Vents soufflant dans la région méditerranéenne nord occidentale (carte Google Earth)

#### a. Le Mistral et La Tramontane

Le Mistral est un vent violent, froid et généralement sec de secteur nord à ouest. Il naît d'un gradient de pression généré par la présence d'un anticyclone s'étendant de l'Espagne vers le sud-ouest à travers le Golfe de Gascogne et d'une dépression sur le Golfe de Gênes. Il parcourt la basse vallée du Rhône de secteur nord, puis s'oriente nord-ouest dans la région marseillaise et enfin devient ouest sur la côte varoise et la Corse. Le vent s'accélère sous l'effet Venturi grâce à la topographie rectiligne et encaissée de la vallée du Rhône jouant le rôle d'un goulot. Il souffle en

moyenne à  $15 \text{ m.s}^{-1}$  et peut dépasser  $30 \text{ m.s}^{-1}$  en rafales. Il est plus fort en hiver et au printemps et peut durer plusieurs jours.

La Tramontane est équivalente au Mistral dans le Golfe du Lion. C'est un vent sec, froid et violent de secteur nord-ouest, dominant dans la région Languedoc-Roussillon. Il s'accélère dans le couloir délimité par le Massif central et les Pyrénées. La Tramontane et Le Mistral sont des vents très proches, générés par les mêmes conditions cycloniques. La Tramontane se forme et s'arrête généralement quelques heures avant le Mistral.

### **b. Le Levant**

Le Levant est un vent de secteur est-sud-est. Il est souvent annoncé par des passages de cirrus et d'altocumulus venant du sud-ouest ou du sud. Ce vent est généralement fort et régulier, voire parfois violent. Il parcourt la Méditerranée où il se charge en humidité. Il la restitue ensuite sous forme de grisaille ou de pluie sur le relief côtier, de la montagne noire aux premières hauteurs provençales. Il est lié à la présence d'un gradient de pression généré par une dépression sur la Méditerranée occidentale (Baléares, Golfe du Lion) ou vers la Péninsule ibérique et d'un anticyclone vers les Alpes ou l'Europe Centrale. Le relief va ensuite canaliser le vent, en lui faisant longer les côtes varoises et le renforcer de l'embouchure du Rhône au Languedoc-Roussillon.

### **c. Les brises littorales**

Les brises littorales sont des vents locaux faibles générés dans des conditions météorologiques calmes. La mer et la terre s'échauffent différemment sous l'effet du rayonnement solaire. Les gradients de température entre les masses d'air au dessus de la terre et de la mer génèrent des cellules convectives locales. La journée, la terre est généralement plus chaude que la mer, le vent souffle de la mer vers la terre, on parle de brise de mer. La nuit, la terre est plus froide, la cellule de convection s'inverse, on parle alors de brise de terre. Les brises littorales dépendent fortement du cycle diurne-nocturne et de la configuration locale.

## **3.2.2 Origine des masses d'air**

La Figure 3-2 illustre les rétrotrajectoires des masses d'air calculés par HYSPLIT, c'est-à-dire, le chemin le plus probable qu'aurait parcouru une particule mesurée à une position donnée et à un instant  $t$ . La position de la particule est représentée par une étoile sur les cartes. Les trajectoires bleues et rouges correspondent à des particules mesurées à des altitudes de 100 et 500 m, respectivement. Les points des trajectoires (losanges ou triangles) sont tracés toutes les 6 heures.

Par vent d'ouest (Figure 3-2a), les masses d'air survolent l'Atlantique puis l'ouest de la France avant d'arriver à Porquerolles. Par Mistral (Figure 3-2b), elles transitent au dessus de la vallée du

Rhône. Dans le cas du Levant (Figure 3-2c), les particules longent la côte ouest de l'Italie, en passant par le Golfe de Gênes. Lors de vent de secteur sud (Figure 3-2d), les masses d'air traversent la Méditerranée et peuvent survoler l'Espagne et provenir d'Afrique du Nord.

Suivant leur origine, les masses d'air survolent la mer, des zones urbanisées, agricoles, naturelles ou encore désertiques. Les différents régimes de vent dans la région nord méditerranéenne favorisent le transport de particules de diverses sources (marine, anthropique, continentale, poussières désertiques).

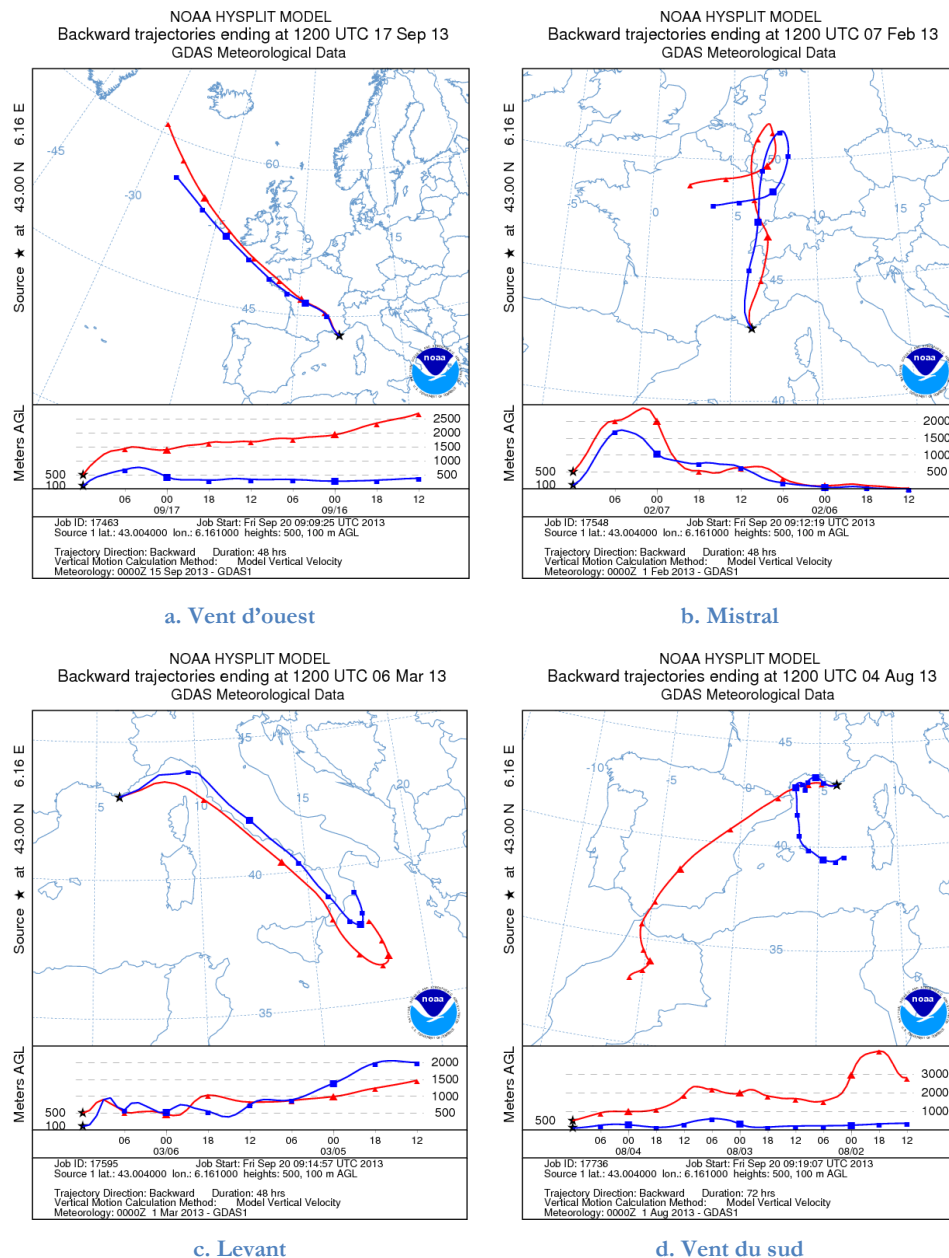


Figure 3-2 : Retrotrajectoire des masses d'air pour différentes conditions de vents dans la région méditerranéenne (HYSPLIT)



### 3.3 Sites et instrumentation

#### 3.3.1 La station de Porquerolles

L'île de Porquerolles, située dans la baie d'Hyères, est le point le plus avancé en mer de la côte méditerranéenne. Située dans une réserve naturelle, c'est un lieu privilégié pour l'observation des particules transitant au-dessus de la mer. La position de la station a été choisie suivant deux impératifs : être soumise aux vents dominants et la possibilité d'être en condition de fetches courts et infinis. Ainsi, la station se situe sur la pointe extrême ouest de l'île (Figure 3-3).

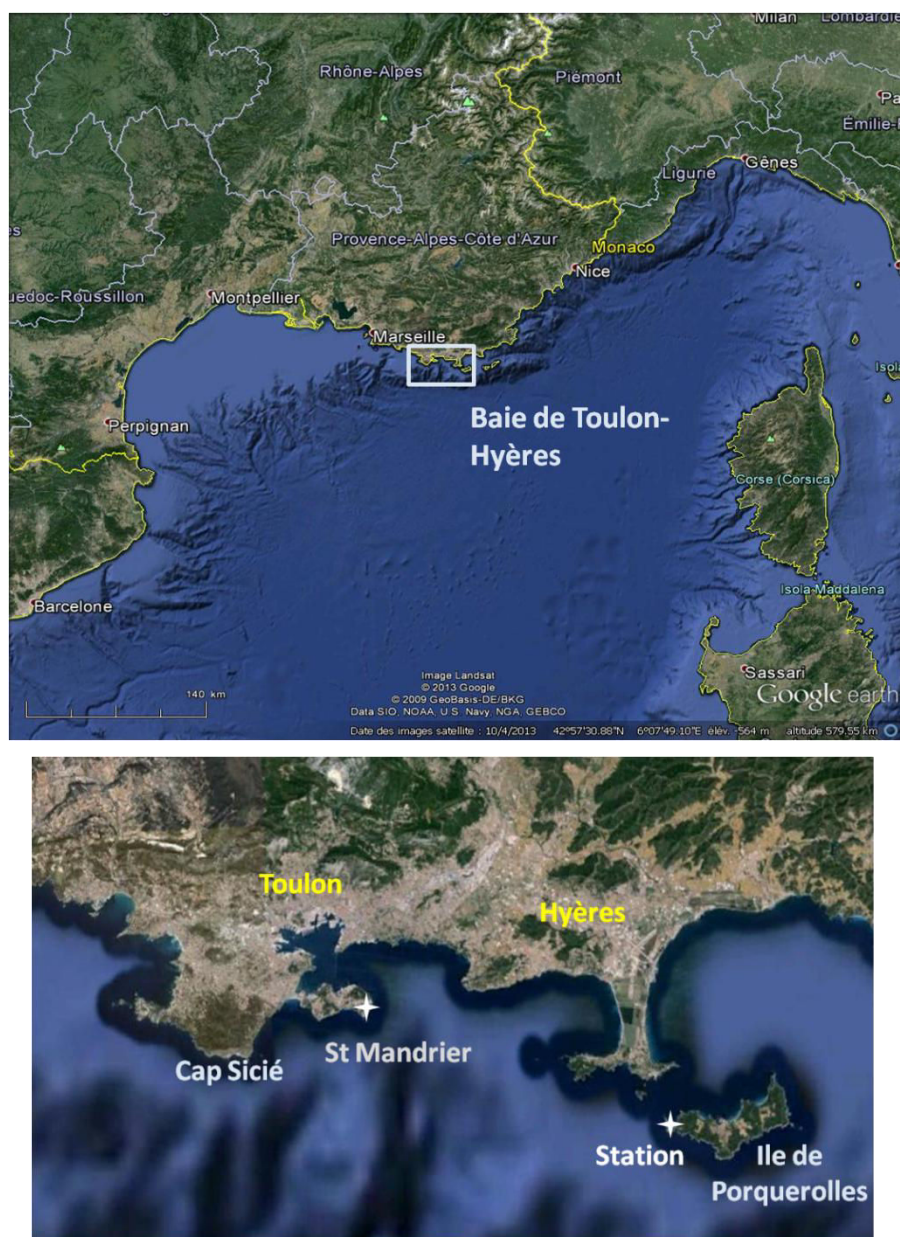


Figure 3-3 : Localisation de la station de Porquerolles (carte Google Earth)



La station de Porquerolles dispose d'un abri et d'un mat de 5 m de haut (Figure 3-4). Le mat est équipé de capteurs météorologiques (Tableau 3-1) et de sondes granulométriques ou impacteurs en cascade, suivant les campagnes de mesures. De part la position de la station, il est nécessaire que le matériel choisi soit résistant aux intempéries et inoxydable. La station est isolée et nécessite d'être autonome en énergie. Elle est équipée d'une éolienne et de panneaux photovoltaïques reliés à un cluster batteries. En 2012, dans le cadre du projet ANR POAEMM, son autonomie a été accrue. De plus, les mesures peuvent être déclenchées ou arrêtées à distance, et les données récupérées grâce à un lien GSM.



Figure 3-4 : Station de Porquerolles : (a) Mat équipé de capteurs et (b) Eolienne et panneaux photovoltaïques

Paramètre mesuré	Capteur	Type	Min	Max	Précision
Vitesse du vent	Anémomètre	A100LK	0.3 m.s <sup>-1</sup>	75 m.s <sup>-1</sup>	1%
Direction du vent	Girouette	W200P	0°	360°	2°
Température	Thermomètre &	SDL5210	-55 °C	+90 °C	2%
Humidité relative	Hygromètre		0%	100%	
Pression	Baromètre	820 (Sky Inst.)	800 hPa	1100 hPa	1 hPa

Tableau 3-1 : Références des différents capteurs météorologiques de la station de Porquerolles

Durant la campagne MIRAMER, les mesures des distributions granulométriques des particules ont été acquises par une sonde PMS couvrant la gamme de taille 0.2-20  $\mu\text{m}$ . Les spectres de particules ont été mesurés du 20 au 23 mai 2008 avec un pas d'échantillonnage d'une minute.

Durant la campagne de mesures Porquerolles 2007, les particules d'aérosols ont été échantillonnées directement à l'aide de deux Impacteurs en cascade à basse pression (Dekati, 30 lpm et 20 lpm) de 13 étages et de diamètres aérodynamiques de coupures : 0.03, 0.06, 0.108, 0.17, 0.26, 0.4, 0.65, 1, 1.6, 2.5, 4.4, 6.8 et 9.97  $\mu\text{m}$ . Le laboratoire de Météorologie Physique de Clermont-Ferrand a réalisé l'analyse des filtres. Les composés chimiques solubles ont été quantifiés par chromatographie ionique. Les filtres du premier impacteur étaient dédiés aux

analyses des concentrations en carbone élémentaire (EC) et en carbone organique (OC) et ceux du deuxième aux ions suivants :  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{K}^{+}$ ,  $\text{Na}^{+}$ ,  $\text{Ox}^{2-}$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^{2-}$ ,  $\text{Cl}^{-}$ .

### 3.3.2 Mesures en mer

#### a. Le navire océanographique Atalante

L'Atalante est un navire de recherche scientifique pluridisciplinaire de l'IFREMER, destiné aux géosciences marines, à l'océanographie physique et à la biologie marine. Durant la campagne MIRAMER, le navire était doté de divers instruments dont une station météo et deux sondes optiques.

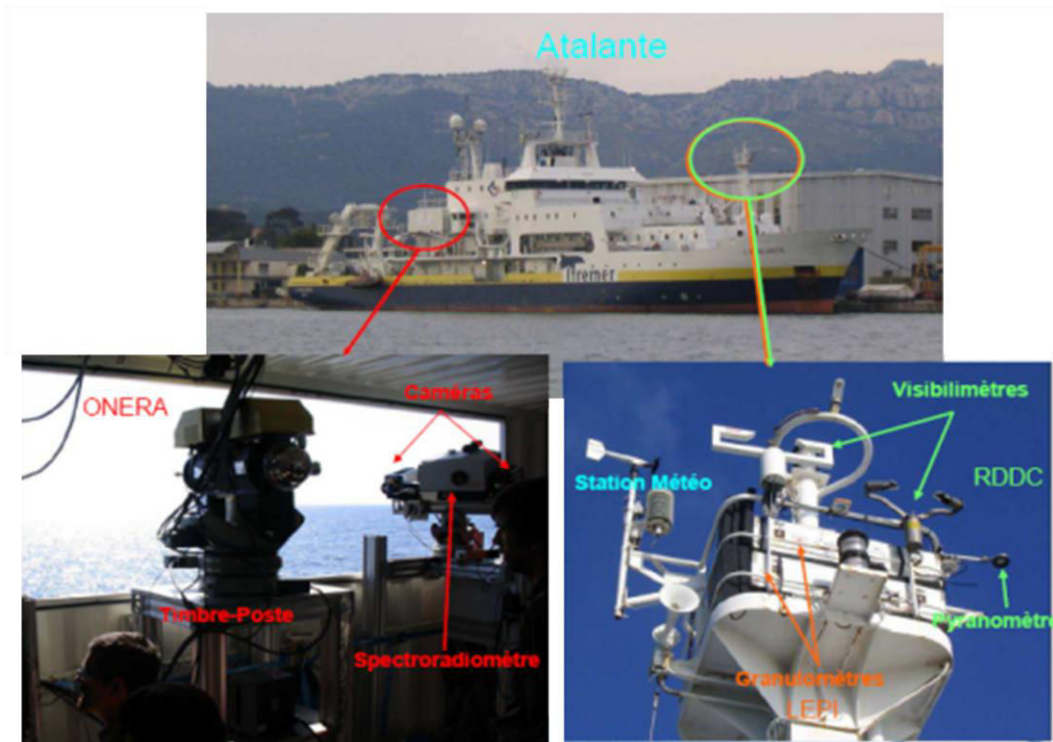


Figure 3-5 : Equipements de l'Atalante (MIRAMER 2008)

La première sonde optique (CSASP-100-HV) enregistrait des particules de diamètres compris entre 0.75 et 95  $\mu\text{m}$ . La deuxième (ASASP-X) mesurait les concentrations de particules dans la gamme de taille 0.094-2.92  $\mu\text{m}$ . La période d'échantillonnage était de quatre minutes.

Les mesures ont été prises entre le 18 et le 28 mai sur 19 sites (Figure 3-6) répartis entre Marseille et Toulon. Ces mesures présentent l'avantage d'avoir été effectuées dans plusieurs conditions de

fetch et de vent et à proximité de zones urbanisées ou au contraire au large à une centaine de kilomètre au sud de Toulon.



Figure 3-6 : Stations de mesures de l'Atalante durant la campagne MIRAMER 2008 (carte Google Earth)

## b. La bouée et le houlographe

Durant la campagne MIRAMER une bouée météo et un houlographe ont été installés à l'est du Cap Sicié (Figure 3-7). La proximité des côtes a entraîné un biais dans les mesures effectuées par le houlographe à cause du phénomène de diffraction des vagues sur la côte. Nous utiliserons alors les données acquises par une bouée de PREVIMER installée au sud de Porquerolles. Les paramètres fournis sont : la fréquence pic, la hauteur et la longueur d'onde des vagues.

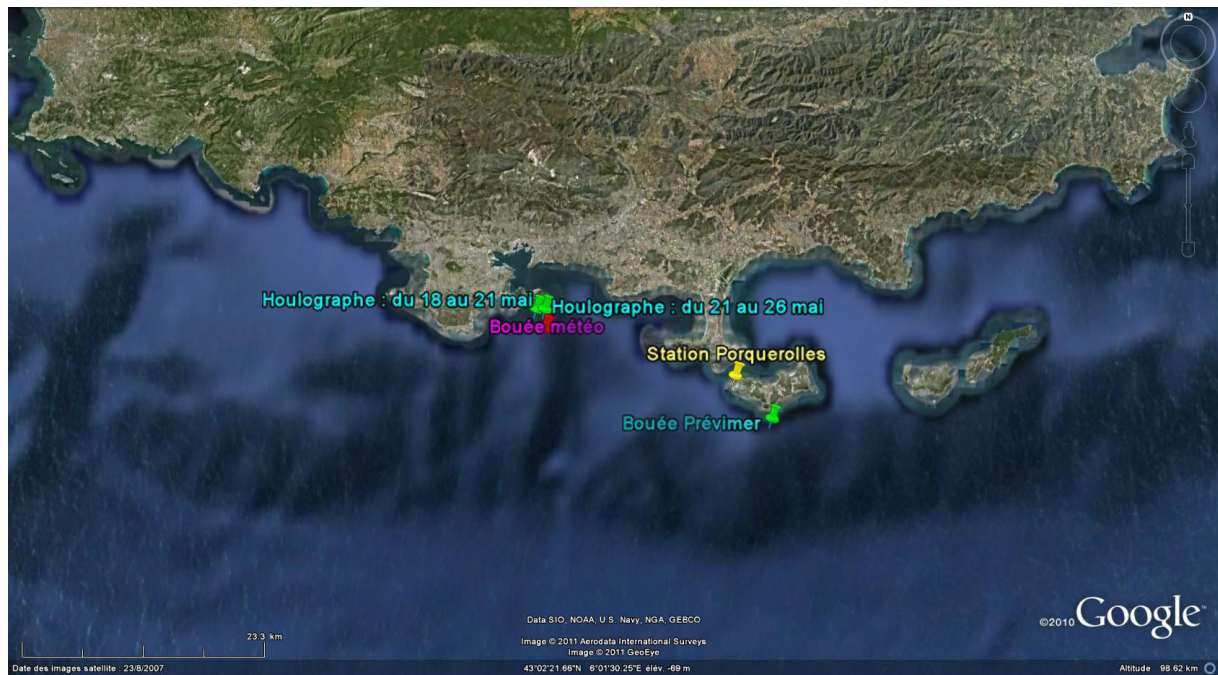


Figure 3-7 : Bouée et houlographe, campagne MIRAMER et PREVIMER  
(carte Google Earth)



# Chapitre 4. Modélisation

## 4.1 Introduction

L'objectif de ce travail est d'améliorer la modélisation du transport et de la source des aérosols marins en zone côtière méditerranéenne. C'est dans ce but que le laboratoire du MIO développe le Marine Aerosol Concentration Model (MACMod) qui simule la production et le transport des aérosols marins en zone côtière.

## 4.2 Marine Aerosol Concentration Model (MACMod)

### 4.2.1 Description

Le modèle MACMod (Tedeschi & Piazzola 2011) simule la production et le transport de particules d'aérosols marins en zone côtière sur un domaine instationnaire et bidimensionnel. Les Figure 4-1 et 4-2 présentent deux exemples de simulations du modèle. La première illustre le transport des aérosols marins générés à l'interface air-mer au cours du temps dans une atmosphère initialement propre. La seconde correspond au cas pour lequel la production marine est nulle et l'entrée du domaine de calculs est initialisée avec un profil vertical de concentration (constant au cours du temps). Codé en MATLAB, le modèle résout les équations de transport des particules d'aérosols (4-1) intégrée dans un système de coordonnées cartésiennes ( $Oxz$ ) par la méthode des volumes finis (Patankar & Spalding 1972).

Il nécessite des données d'environnement en entrée telles que les températures de l'air et de l'eau, la vitesse du vent, la vitesse de frottement, la concentration initiale en particules, *etc.* Les données météorologiques peuvent soit être issues des sorties d'un modèle météorologique, soit être entrées paramétriquement.

Le modèle est composé d'un code principal faisant appel à différentes procédures fournissant les données d'entrées et correspondant aux différents processus physiques comme la fonction source des aérosols, la déposition sèche des aérosols sur la surface marine, ou encore la sédimentation gravitationnelle et la dispersion turbulente.

La concentration en particules peut être calculée pour plusieurs tailles d'aérosols qui n'interagissent pas entre eux. La coagulation, l'éclatement ainsi que les phénomènes de transfert d'énergie ne sont donc pas encore pris en compte.

### Source et Transport de particules

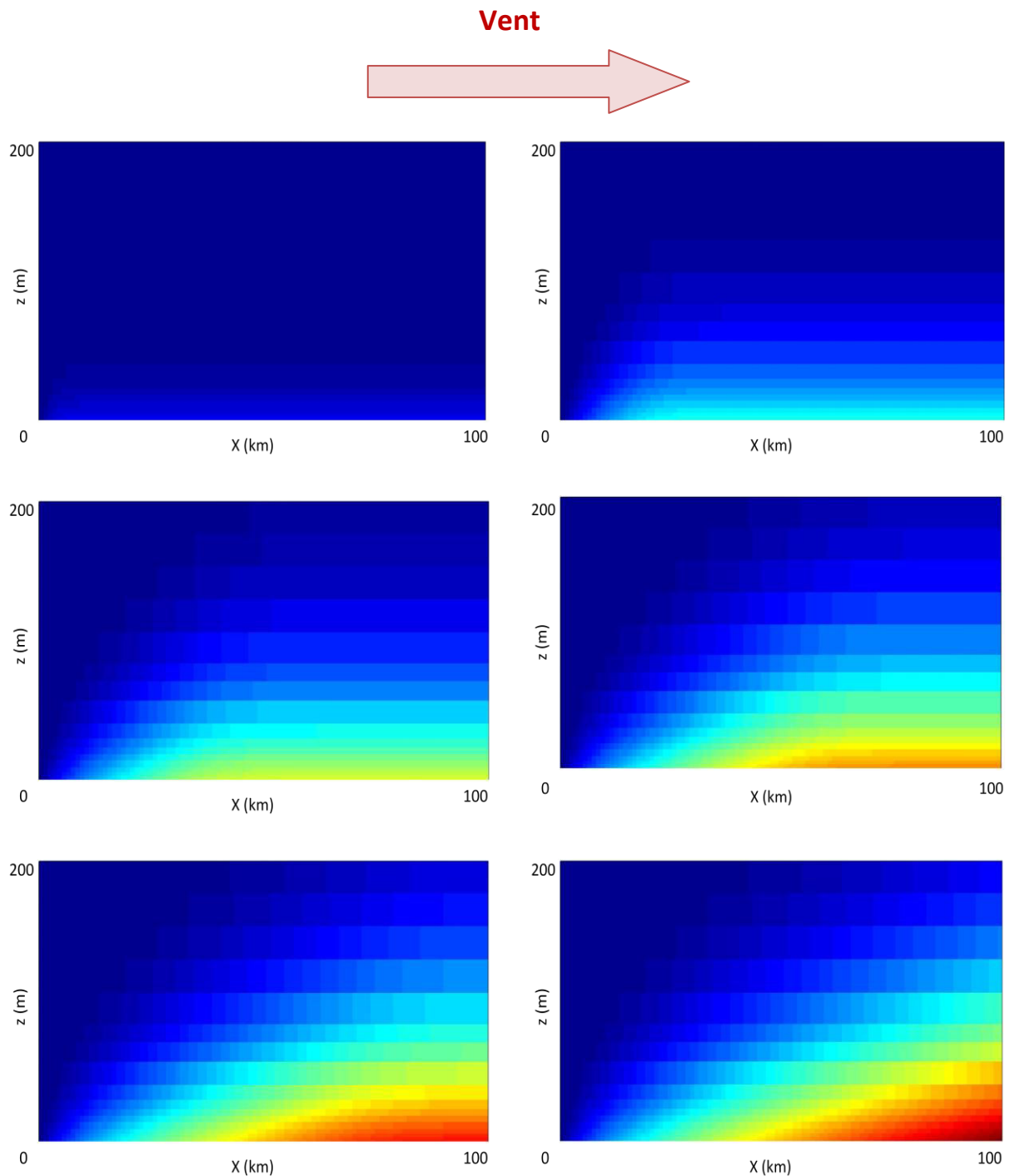


Figure 4-1 : Concentration en particules d'aérosols marins générées à l'interface air-mer, en fonction du temps, calculée par MACMod

## Transport de particules

**Vent**

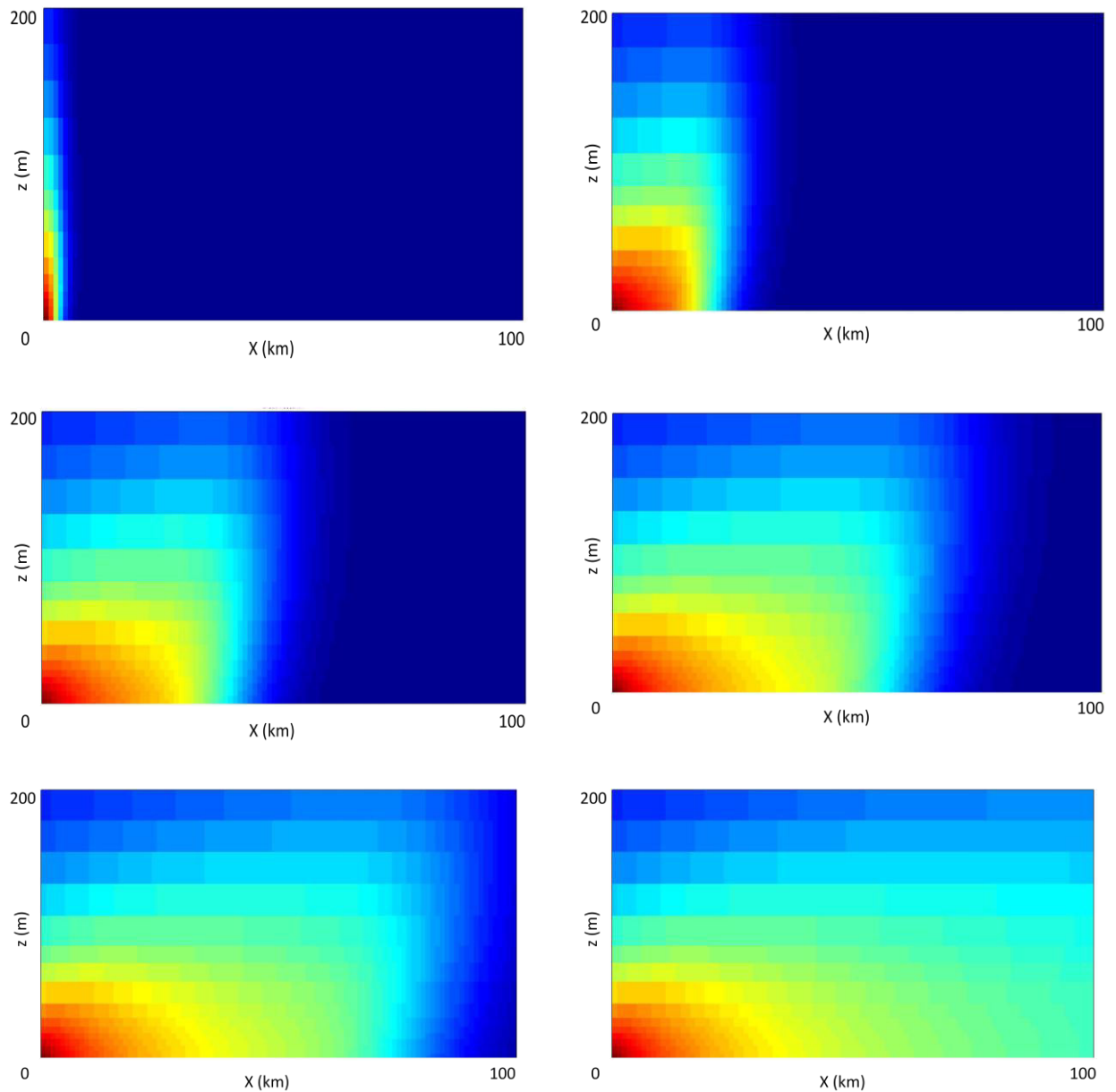


Figure 4-2 : Concentration en particules d'aérosols en fonction du temps, calculée par MACMod. Initialisation avec un profil vertical de concentration à l'entrée du domaine

### 4.2.2 L'équation de transport

La forme généralisée de l'équation de transport est :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + (\vec{U} \cdot \vec{\nabla})C = -\text{div } \vec{F} + S \quad (4-1)$$

Où  $\vec{F}$  est le flux d'aérosols (autre que purement convectif),  $C$  la concentration en aérosols,  $\vec{U}$  (u,v,w) la vitesse du vent moyen et  $S$  le terme source volumique.

Selon Fairall & Davidson (1986), la composante verticale du flux peut être décomposée en trois termes : la diffusion turbulente, la sédimentation et le flux de diffusion de l'aérosol. De plus, si l'on suppose que la convection horizontale est prépondérante devant la diffusion, on peut négliger les composantes horizontales du flux d'aérosols. Cependant, cette hypothèse risque d'être erronée dans le cas d'une faible convection ou d'une forte dispersion turbulente horizontale.

Dans un modèle 2D, l'équation devient :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \underbrace{u \frac{\partial C}{\partial x}}_{\text{Advection Horizontale}} + \underbrace{w \frac{\partial C}{\partial z}}_{\text{Advection Verticale}} = -\frac{\partial}{\partial z} \left[ \underbrace{\overline{w' C'}}_{\text{Diffusion turbulente}} + \underbrace{V_g C}_{\text{Sédimentation}} + \underbrace{\Gamma_c \frac{\partial C}{\partial z}}_{\text{Diffusion moléculaire}} \right] + \underbrace{S}_{\text{Source ou Puit}} \quad (4-2)$$

La diffusion turbulente (4-3) peut s'exprimer en fonction du coefficient de mélange turbulent  $K$  et de la variation verticale de concentration.

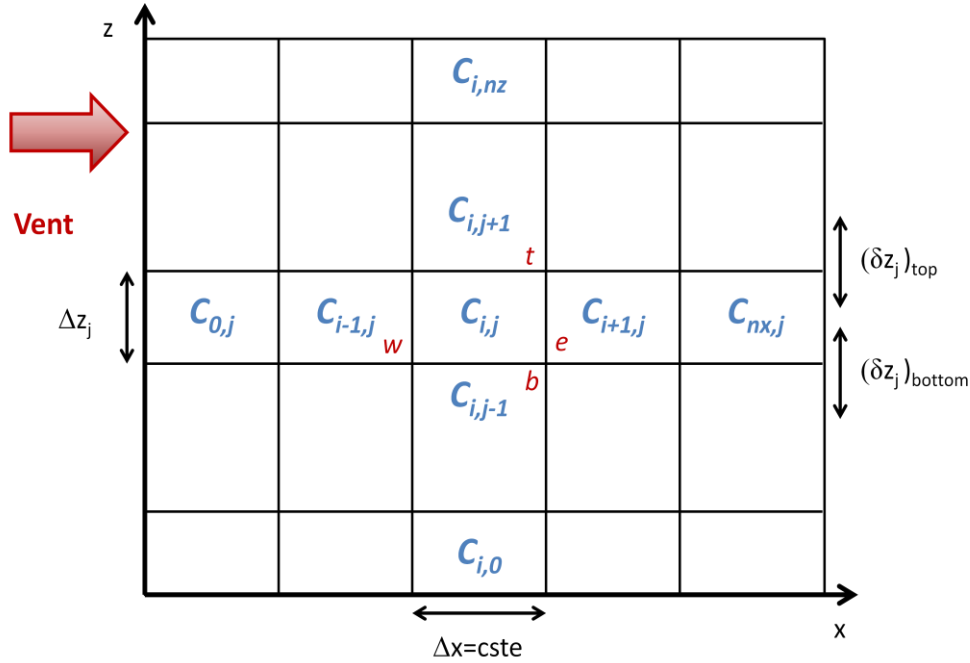
$$\overline{w' C'} = -K \frac{\partial C}{\partial z} \quad (4-3)$$

### 4.2.3 Discrétisation

Le domaine est divisé en  $n_x \times n_z$  mailles de dimension  $\Delta x$  par  $\Delta z$ . Le gradient de concentration suivant la verticale est généralement de forme exponentielle, c'est pourquoi les mailles sont étirées lorsque l'altitude augmente, c'est-à-dire que le pas  $\Delta z$  est variable. L'équation bilan (4-2) est intégrée par la méthode des volumes finis (Patankar & Spalding 1972).

Une direction privilégiée pour la vitesse horizontale est supposée. L'entrée du domaine (amont) correspond à la maille  $i=0$ . La Figure 4-3 présente le maillage du domaine.



Figure 4-3 : Maillage du domaine (*w* (west), *e* (east), *b* (bottom) et *t* (top))

#### a. Points intérieurs ( $1 < j < nz-1$ )

L'équation bilan de la concentration est intégrée dans un volume spatio-temporel représenté par une maille définie entre le temps  $t$  et le temps  $t+\Delta t$ . Les indices de la maille de coordonnées  $(i,j)$  sont  $w$  (west),  $e$  (east),  $b$  (bottom) et  $t$  (top). L'équation bilan intégrée devient :

$$\begin{aligned}
 & \int_{w}^{e} \int_{b}^{t} \int_t^{t+\Delta t} \frac{\partial C}{\partial t} dt dz dx + \int_t^{t+\Delta t} \int_b^e u \frac{\partial C}{\partial x} dx dz dt + \int_t^{t+\Delta t} \int_w^e w \frac{\partial C}{\partial z} dz dx dt \\
 & = - \int_t^{t+\Delta t} \int_w^e \frac{\partial F_z}{\partial z} dz dx dt + \int_t^{t+\Delta t} \int_w^e S dz dx dt
 \end{aligned} \quad (4-4)$$

Le terme source volumique est supposé constant dans la maille spatiale. On prendra alors sa valeur moyenne  $\bar{S}_{i,j}$ . Les flux sont supposés constants à travers les surfaces du volume d'intégration. Les variations temporelles sont supposées prépondérantes devant les variations spatiales pour le terme de la dérivée temporelle de la concentration. L'équation (4-7) devient :

$$\begin{aligned}
 & [C_{i,j}]_t^{t+\Delta t} \Delta x \Delta z_j + \Delta z_j \int_t^{t+\Delta t} [(uC)_e - (uC)_w] dt + \Delta x \int_t^{t+\Delta t} [(wC)_t - (wC)_b] dt \\
 & = -\Delta x \int_t^{t+\Delta t} [(F_z)_t - (F_z)_b] dt + \Delta x \Delta z_j \int_t^{t+\Delta t} \bar{S}_{i,j} dt
 \end{aligned} \quad (4-5)$$

Pour l'intégration en temps, le schéma est implicite, l'indice <sup>0</sup> désignant le temps antérieur. En divisant l'équation (4-5) par  $\Delta t$ , on obtient :

$$\begin{aligned} & \underbrace{[C_{i,j} - C_{i,j}^0] \frac{\Delta x \Delta z_j}{\Delta t}}_{(1)} + \underbrace{[(uC)_e - (uC)_w] \Delta z_j}_{(2)} + \underbrace{[(wC)_t - (wC)_b] \Delta x}_{(3)} \\ & = \underbrace{-\Delta x [(F_z)_t - (F_z)_b]}_{(4)} + \underbrace{\Delta x \Delta z_j \bar{S}_{i,j}}_{(5)} \end{aligned} \quad (4-6)$$

Les termes (2), (3) et (4) sont décomposés suivant un schéma amont. L'équation bilan, écrite sous forme de coefficients, devient :

$$-a_{i,j-1}C_{i,j-1} + a_{i,j}C_{i,j} - a_{i,j+1}C_{i,j+1} = a_{i-1,j}C_{i-1,j} + a_{i+1,j}C_{i+1,j} + a_{i,j}^0C_{i,j}^0 + b_{i,j} \quad (4-7)$$

Avec :

$$\begin{aligned} a_{i,j} &= a_{i,j-1} + a_{i,j+1} + a_{i-1,j} + a_{i+1,j} + a_{i,j}^0 + \Delta z_j (u_{i,j}^e - u_{i,j}^w) + \Delta x \left[ (w_{i,j}^t - V_{g,i,j}^t) - (w_{i,j}^b - V_{g,i,j}^b) \right] \\ a_{i,j-1}^B &= \Delta x \left[ \max(w_{i,j}^b - V_{g,i,j}^b, 0) + \frac{K_{i,j}^b + D_{i,j}^b}{(\delta z_j)^b} \right] \\ a_{i,j+1}^T &= \Delta x \left[ \max(V_{g,i,j}^t - w_{i,j}^t, 0) + \frac{K_{i,j}^t + D_{i,j}^t}{(\delta z_j)^t} \right] \\ a_{i-1,j} &= \Delta z_j \max(u_{i,j}^w, 0) \\ a_{i+1,j} &= \Delta z_j \max(u_{i,j}^e, 0) \\ a_{i-1,j}^0 &= \frac{\Delta x \Delta z_j}{\Delta t} \\ b_{i,j} &= \Delta x \Delta z_j \bar{S}_{i,j} \end{aligned}$$

## b. Frontière inférieure (j=0)

Le flux convectif vertical au niveau du sol est considéré nul ( $w_b=0$ ). Le flux à la surface (correspondant à la fonction source, section 2.5.2) est imposé et variable suivant  $x$ . Le flux total à la surface sera égal au flux de production moins le flux de dépôt,  $F_{sea} - F_d$  (cf. sections 4.3.1 et 4.3.2). L'équation sous la forme de coefficients s'écrit :

$$a_{i,0}C_{i,0} + a_{i,0}^T C_{i,1} = a_{i,0}^0 C_{i,0}^0 + a_{i-1,0}C_{i-1,0} + a_{i+1,0}C_{i+1,0} + b_{i,0} \quad (4-8)$$

avec,

$$a_{i,0} = a_{i,0} + a_{i-1,0} + a_{i+1,0} + a_{i,0}^0 + \Delta z_0 (u_{i,0}^e - u_{i,0}^w) + \Delta x (w_{i,0}^t - V_{g,i,0}^t)$$

$$a_{i,1}^T = \Delta x \left[ \max(V_{g_{i,0}}^t - w_{i,0}^t, 0) + \frac{K_{i,0}^t + D_{i,0}^t}{(\delta z_0)^t} \right]$$

$$a_{i-1,0} = \Delta z_0 \max(u_{i,0}^w, 0)$$

$$a_{i+1,0} = \Delta z_0 \max(u_{i,0}^e, 0)$$

$$a_{i,j}^0 = \frac{\Delta x \Delta z_0}{\Delta t}$$

$$b_{i,0} = \Delta x (F_{sea_i} - F_d + \Delta z_j \bar{S}_{i,j})$$

### c. Frontière supérieure ( $j=nz$ )

La frontière est supposée suffisamment élevée pour que la concentration soit nulle, quelque soit la position en  $x$ . Ainsi, on aura en  $j=nz-1 \Rightarrow C_{i,j+1} = C_{i,nz} = 0$ . Une étude préalable est généralement menée pour vérifier que la hauteur du domaine n'influence pas le profil vertical.

### d. Frontière amont ( $x=0$ )

Un profil vertical de concentration  $C_m(z_i, t)$  est imposé en amont. On a alors :  $C_{0,j} = C_m$ . Le profil est pris égal à 0 dans le cas d'une atmosphère propre en amont.

### e. Frontière aval ( $x=nx$ )

La connaissance de la valeur de la concentration en  $i=nx$  n'est pas nécessaire pour la résolution du système.

## 4.2.4 Equation matricielle

La résolution est effectuée pour chaque ligne  $i$  (verticale) successivement, en supposant les lignes avant ( $i-1$ ) et après ( $i+1$ ) connues. Celle d'avant ( $i-1$ ) vient d'être résolue et celle d'après ( $i+1$ ) est connue pour le temps antérieur. Le domaine est ainsi balayé d'amont en aval.

L'équation bilan est mise sous la forme d'une matrice pour chaque ligne  $i$  :

$$A_i \vec{C}_i = \vec{B}_i \quad (4-9)$$

Où  $A_i$  est une matrice carrée tri-diagonale de dimension  $(nz \times nz)$ .  $C_i$  et  $B_i$  sont des vecteurs de dimension  $nz$ . Un champ de concentration doit donc initialiser les calculs ( $t=0$ ), il peut être nul ou égal à  $C_m(z, t=0)$ .

L'équation matricielle est de la forme suivante :

$$\begin{bmatrix}
 a_{i,0} & -a_{i,0}^T & 0 & \dots & 0 \\
 -a_{i,1}^B & a_{i,1} & -a_{i,1}^T & 0 & \\
 0 & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\
 \vdots & & -a_{i,j}^B & a_{i,j} & -a_{i,j}^T & \\
 0 & & 0 & -a_{i,nz-2}^B & a_{i,nz-2} & -a_{i,nz-2}^T \\
 0 & \dots & 0 & -a_{i,nz-1} & a_{i,nz-1} & 
 \end{bmatrix} \otimes \begin{bmatrix} C_{i,0} \\ C_{i,1} \\ \vdots \\ C_{i,j} \\ \vdots \\ C_{i,nz-2} \\ C_{i,nz-1} \end{bmatrix} \quad (4-10)$$

$$= \begin{bmatrix}
 a_{i-1,0}C_{i-1,0} + a_{i+1,0}C_{i+1,0} + a_{i,0}^0 C_{i,0}^0 + b_{i,0} \\
 a_{i-1,1}C_{i-1,1} + a_{i+1,1}C_{i+1,1} + a_{i,1}^0 C_{i,1}^0 + b_{i,1} \\
 \vdots \\
 a_{i-1,j}C_{i-1,j} + a_{i+1,j}C_{i+1,j} + a_{i,j}^0 C_{i,j}^0 + b_{i,j} \\
 \vdots \\
 a_{i-1,nz-2}C_{i-1,nz-2} + a_{i+1,nz-2}C_{i+1,nz-2} + a_{i,nz-2}^0 C_{i,nz-2}^0 + b_{i,nz-2} \\
 a_{i-1,nz-1}C_{i-1,nz-1} + a_{i+1,nz-1}C_{i+1,nz-1} + a_{i,nz-1}^0 C_{i,nz-1}^0 + b_{i,nz-1}
 \end{bmatrix}$$

En  $i=0$ , les termes  $C_{0,j}$  auront pour valeurs  $C_{in}(\mathbf{z}_0, t)$  et non celles issues des calculs. En  $i=nx-1$ , les termes  $C_{nx,j}$  n'ont pas besoin d'être connus vu que les coefficients  $a_{nx,j}$  sont nuls.

## 4.2.5 Physique du modèle et procédures

Le modèle MACMod se décompose en plusieurs procédures. Le fichier de paramètres *macin.m*, le programme principal *macmod.m* qui approxime les solutions de l'équation bilan en faisant appel à diverses procédures correspondant aux différents processus (*vgrav.m* pour Vg, *fluxseadep.m* pour  $F_d$ , *fluxseapro.m* pour  $F_{sea}$ ). Il est possible suivant les processus de choisir parmi plusieurs formules. Certaines procédures ont été modifiées afin d'offrir plus d'options et de meilleurs résultats à l'utilisateur.

### a. Option et variables d'environnement

La procédure *macin.m* regroupe l'ensemble des paramètres et options du modèle :

Les options de simulation :

- Type d'affichage (image ou film)
- Profil vertical du vent paramétrique (constant ou logarithmique) ou fourni par un modèle météo
- Vitesse de friction paramétrique, constante ou fournie par un modèle météo

- Choix des formulations du coefficient de diffusion, du coefficient de frottement, de la couverture moutonneuse, du flux de production en zone de surf et en pleine mer, de la vitesse de dépôt, du coefficient de raréfaction
- Pas de temps et pas de temps de sauvegarde automatiques ou manuels
- Nom des fichiers de sauvegarde et du film
- Les caractéristiques de l'aérosol : nombre de rayons, matrice des rayons et densité des particules

Les paramètres physiques du modèle :

- Vitesses du vent horizontale et verticale à 10 m
- Vitesse de friction du vent (valeur constante si non paramétrique)
- Profil vertical de concentration à l'entrée du domaine : nul, à charger à partir du fichier *Cin.txt*, à déterminer à partir d'une valeur choisie manuellement ou donnée par MEDEX, profil constant ou logarithmique
- Hauteur de la couche de surface et de la CLAM
- Largeur de la zone de surf
- Température de l'eau et de l'air, viscosité dynamique de l'air, hauteur et âge des vagues, hauteur de référence, hauteur de la fonction source

Les paramètres de simulation :

- Nombre de mailles en x et en z
- Indice de début et de fin (en x) de la zone de surf
- Temps final des calculs
- Pas d'espace en mètres
- Nombre de pas de temps par maille
- Pas de temps d'intégration et de sauvegarde si non automatique
- Nombre d'images par seconde pour le film
- Critère de variation minimale de la concentration sur l'ensemble du domaine pour établir la stationnarité
- Les paramètres du modèle météorologique si utilisé : dimension de la grille

La position verticale des points et des faces se trouvent dans les fichiers *zp.txt* et *zf.txt*, respectivement. Suivant l'option choisie, le modèle utilise le fichier *Cin.txt* qui comprend le profil vertical en particules pour chaque rayon de particules, le *Temp.txt* fournissant le profil vertical de température. Il est également possible d'utiliser un profil horizontal de vent.

## b. Programme principal

Dans un premier temps, le modèle charge l'ensemble des données et effectue les calculs préliminaires : profil de vent, vitesse de friction, grille de calculs.

Dans un second temps, le modèle approxime les solutions de l'équation matricielle (4-10). Pour chaque rayon de particules, le modèle calcule ligne par ligne les coefficients de la matrice  $A_i$  (cf. équations (4-9) et (4-10)). Puis, la matrice de concentration est déterminée en effectuant le produit suivant :

$$C_i = A_i \times (B_i)^{-1} \quad (4-11)$$

Au temps initial, la matrice  $C_i$  est nulle. Ensuite, à chaque pas de temps, elle est remplacée par la matrice  $C_i$  du temps précédent. Lorsque le temps final ou l'état stationnaire ( $C \approx C_i^0$  à  $10^{-6}$  près) est atteint, les calculs s'arrêtent. La matrice  $C$  est régulièrement sauvegardée dans une matrice 4-D fonction du fetch, de l'altitude, du rayon et du temps.

## c. Procédures

### Vitesse gravitationnelle

La vitesse de gravité  $V_g$  est calculée dans la procédure *vgrav.m*. Elle est déterminée à l'aide de la forme générale qui est la suivante :

$$V_g = \frac{2\rho_p g r^2 C_r}{9\eta} \quad (4-12)$$

Où  $\rho_p$  est la densité des particules,  $r$  le rayon des particules,  $\eta$  la viscosité dynamique de l'air et  $C_r$  le coefficient de raréfaction de l'air autour de l'aérosol. Cette formulation suppose des aérosols de forme aérodynamique sphérique et une vitesse de chute relativement lente ( $Re \ll 1$ ).

Le coefficient de raréfaction est déterminé dans une procédure séparée *crar.m*. Il s'écrit :

$$C_r = 1 + \frac{\lambda}{r} [A + B \exp(-C r/\lambda)] \quad (4-13)$$

Les valeurs des coefficients  $A$ ,  $B$  et  $C$  varient suivant les auteurs. MACMod utilise ceux de Vignati et al. (2001) :  $A=1.257$ ,  $B=0.4$  et  $C=1.1$ . Il prend en compte le moindre impact des molécules d'air sur l'aérosol lorsque ce dernier n'est plus très grand par rapport aux distances intermoléculaires.

Le libre parcours moyen est déterminé dans la procédure *libreparcours.m* à partir de la formule suivante :

$$\lambda = \frac{\eta}{\rho \sqrt{\frac{\pi}{2(RT)}}} \quad (4-14)$$

Où R est la constante spécifique de l'air sec.

### Flux de dépôt

Le flux de dépôt  $F_d$  est un flux vertical orienté vers le bas décrivant le nombre de particules s'éliminant de l'atmosphère par contact sur la surface marine (ou terrestre). Ce flux est proportionnel à la concentration en particules à la surface et à la vitesse de dépôt  $V_d$ .

$$F_d = -V_d C \quad (4-15)$$

C est la concentration à la hauteur de référence  $z_r$ .

La vitesse de dépôt combine la méthode des résistances à l'hypothèse de la couche à flux constant.

$$V_d = \frac{[k'_c + V_g(r_d)][k'_d + V_g(r_w)]}{k_c + k'_d + V_g(r_w)} \quad (4-16)$$

Fairall & Davidson (1986) et Vignati et al. (2001) proposent les formulations suivantes.

**Vignati et al. (2001) :**

$$k'_c = (1 - \kappa)^{-1} C_d U$$

$$k'_d = \kappa^{-1} C_d U \left( S_c^{-1/2} + 10^{-3/S_t} \right)$$

**Fairall & Davidson (1986) :**

$$k'_c = (1 - \kappa)^{-1} \sqrt{C_d} U_*$$

$$k'_d = \kappa^{-1} \sqrt{C_d} U_* S_c^{-1/2}$$

avec,

$$S_t = \frac{V_g U_*^2}{g\nu} \quad \text{le nombre de Stokes}$$

$$S_c = \frac{\nu}{D} \quad \text{le nombre de Schmidt}$$

$$D = \frac{kT C_r}{3\pi\eta d} \quad \text{le coefficient de diffusion de l'aérosol (k=1.38 10<sup>-23</sup> J.K<sup>-1</sup>)}$$

Dans MACMod, le flux de dépôt est calculé dans la procédure *fluxseadep.m*. Il est possible de choisir la formule de la vitesse de dépôt dans le fichier *macin.m*.

### Turbulence

Le transport vertical turbulent est paramétrisé par le coefficient de diffusivité  $K$ . Ce dernier dépend de l'altitude, de la stabilité atmosphérique et de la vitesse de friction.

$$K = \frac{\kappa U_* z}{\phi(z/L)} \quad (4-17)$$

La fonction  $\Phi(z/L)$  est définie selon la formulation de Businger et al. (1971), elle dépend de la stabilité atmosphérique :

$$\phi(z/L) = \begin{cases} 1 - 4.7 z/L & z/L > 0 \text{ (stable)} \\ 1 & z/L = 0 \text{ (neutre)} \\ (1 - 4.7 z/L)^{-1/4} & z/L < 0 \text{ (instable)} \end{cases} \quad (4-18)$$

Le rapport  $z/L$  est calculé dans une procédure séparée, *zonl.m*, à partir du nombre de Richardson-bulk, calculé également dans une autre procédure, *Rib.m*. Cette relation est complexe et fait l'objet de diverses approximations.

Lorsque l'atmosphère est instable, Deardorff (1968) propose :

$$\frac{z}{L} = C R_{ib} \quad (4-19)$$

$C$  est un coefficient dépendant des conditions environnementales, variable entre 4 et 13, selon Hsu (1989). Grachev & Fairall (1997) ont montré que la valeur de 10 donnait des résultats corrects.

Dans le cas stable, le rapport devient :

$$\frac{z}{L} = \frac{C R_{ib}}{1 - \alpha R_{ib}} \quad (4-20)$$

Dyer (1974) propose  $\alpha \approx 5$ , la formule ne marche donc plus lorsque  $R_{ib} \geq 0.2$ . On supposera alors que  $K$  est suffisamment proche de 0 pour être négligé.

La longueur de Monin-Obukhov est définie dans la procédure *monin.m* telle que :

$$L = - \frac{u_*^2 T_{air}}{\kappa g (T_{air} - T_{eau})} \quad (4-21)$$

Cependant, cette méthode de calcul du coefficient de diffusion turbulente est limitée du fait que la stabilité atmosphérique est déterminée uniquement à partir de la température de l'air à 10 m et la température de l'eau. Nous avons alors introduit dans le modèle une nouvelle procédure qui permet de déterminer le coefficient  $K$  à partir d'un profil de température potentielle. Dans la



procédure *macin.m* on pourra choisir l'option de la forme du coefficient  $K$ , soit la méthode d'origine expliquée ci-dessus, soit celle utilisant le profil de température potentielle.

La théorie en  $K$  n'est pas recommandée dans le cas d'une CLAM convective. Dans la nouvelle version du modèle, il est possible de choisir la paramétrisation du coefficient de diffusion turbulente suivante :

#### Couche de surface neutre

$$K = \kappa^2 z^2 \frac{\partial \bar{U}}{\partial z} \quad (4-22)$$

#### Couche de surface stable

$$K = \kappa^2 z^2 \left[ \frac{\partial \bar{U}}{\partial z} - \left( \frac{L_*}{z} \right)^{1/6} \left\{ \frac{15g}{\bar{\theta}_v} \times \left| \frac{\partial \bar{\theta}_v}{\partial z} \right| \right\}^{1/2} \right] \quad (4-23)$$

avec  $\theta_v$  la température virtuelle potentielle et  $L_*$  longueur de Monin-Obukhov à l'interface air-mer (Stull 1988) définie telle que :

$$L_* = - \frac{\theta u_*^2}{15 \kappa g \theta_*} \quad (4-24)$$

où  $\theta$  est la température potentielle et  $\theta_*$  la température potentielle à l'interface air-mer.

#### Couche de surface instable

$$K = \kappa^2 z^2 \left[ \frac{\partial \bar{U}}{\partial z} + \left\{ \frac{g}{\bar{\theta}_v} \times \left| \frac{\partial \bar{\theta}_v}{\partial z} \right| \right\}^{1/2} \right] \quad (4-25)$$

#### Couche limite stable ou neutre (O'Brien 1970)

$$K = K(h) + \left[ \frac{h - z}{h - z_{SL}} \right]^2 \left\{ K(z_{SL}) - K(h) + (z - z_{SL}) \left[ \frac{\partial K}{\partial z} \right]_{z_{SL}} + 2 \frac{K(z_{SL}) - K(h)}{h - z_{SL}} \right\} \quad (4-26)$$

où  $z_{SL}$  est l'épaisseur de la couche de surface.

#### Couche limite instable

$$K = \begin{cases} 1.1 \frac{(R_C - R_i) l^2}{R_i} \left| \frac{\partial \bar{U}}{\partial z} \right| & \text{pour } \frac{\partial \bar{\theta}_v}{\partial z} > 0 \text{ avec } l = kz \text{ pour } z < 200 \text{ m} \\ (1 - 18R_i)^{-1/2} l^2 \left| \frac{\partial \bar{U}}{\partial r} \right| & \text{pour } \frac{\partial \bar{\theta}_v}{\partial z} < 0 \text{ avec } l = 70 \text{ m pour } z > 200 \text{ m} \end{cases} \quad (4-27)$$

$H$  est la hauteur de la CLAM et  $R_C$  le nombre critique de Richardson pour le début de la turbulence.

### Coefficient de frottement

Le coefficient de traînée (ou frottement) permet d'évaluer la vitesse de frottement du vent à partir de la vitesse du vent à 10 m. Dans l'ancienne version de MACMod, ce paramètre était directement calculé dans le programme principal *macmod.m*. Nous avons séparé le calcul du coefficient de frottement dans une nouvelle procédure, nommée *coefdrag.m*, dans laquelle il est possible de choisir parmi plusieurs formulations du coefficient. La forme du coefficient se détermine avec le paramètre *cdform* de la procédure *macin.m*. Parmi les formules, on a :

#### ***Large & Pond (1981)***

$$C_D = \begin{cases} 1.15 \cdot 10^{-3} & \text{si } U_{10} < 10 \text{ m.s}^{-1} \\ (0.49 + 0.065 \times U_{10}) \cdot 10^{-3} & \text{si } U_{10} \geq 10 \text{ m.s}^{-1} \end{cases} \quad (4-28)$$

#### ***Hellerman & Roseinstein (1983)***

$$C_D = [9.34 + 0.788 \times U_{10} + 0.868 \times (T_{\text{air}} - T_{\text{mer}}) - 0.00616 \times U_{10}^2 - 0.012 \times (T_{\text{air}} - T_{\text{mer}})^2 - 0.0214 \times U_{10} \times (T_{\text{air}} - T_{\text{mer}})] \cdot 10^{-3} \quad (4-29)$$

Il est également possible d'utiliser la formule de Hsu (1986) qui prend en compte l'état de mer. Cependant, il est nécessaire de connaître la hauteur des vagues, l'âge des vagues et plus particulièrement la vitesse de friction du vent. En effet, lorsque la vitesse de friction est inconnue, elle est calculée à partir du coefficient de frottement.

$$C_D = \frac{\kappa^2}{\log z + \log 2\pi - \log H_{1/3} - 2 \log C_p/u_* - \Phi(z/L)} \quad (4-30)$$

### Flux de production/fonction source

Le flux de production, ou fonction source, représente le nombre de particules d'aérosols marins éjectées dans l'atmosphère par unité de surface marine. Le modèle distingue la zone de surf de la « pleine mer » pour lesquelles les flux de production en particules sont très différents. Il est également possible de choisir une production en particules marines nulle, représentant par exemple la surface terrestre mais plane.

Le flux de production est calculé dans la procédure *fluxseaprod.m*. La nouvelle version du modèle comporte de nouvelles fonctions sources. La couverture moutonneuse est séparée de la fonction source et calculée dans une nouvelle procédure *whitecap.m*.

En zone de surf, on peut choisir parmi les fonctions sources suivantes (*cf.* Annexe 3):

- ***De Leeuw et al. (2000)***: Produit de fonction puissance dépendant de la taille des particules ( $D_0=1.6-20 \mu\text{m}$ ) et un fonction exponentielle du vent ( $<9 \text{ m.s}^{-1}$ )

- **Kusmierczyk-Michulec et al. (2007)** : Similaire à De Leeuw et al. (2000) mais avec d'autres coefficients
- **Van Eijk et al. (2011)** : Produit de fonction puissance dépendant de la taille des particules ( $D=0.5-10 \mu\text{m}$ ) et d'une fonction exponentielle dépendant de l'énergie dissipée lors du déferlement ( $WED=10-200 \text{ W.m}^{-2}$ )

Et en pleine mer (cf. Annexe 3):

- **Monahan et al. (1986)** : Produit du whitecap fonction du vent et de fonctions dépendant de la taille des particules ( $r_{80}=0.3-20 \mu\text{m}$ )
- **Smith et al. (1993)** : Somme de fonctions log normales dépendant de la taille des particules et du vent ( $r_{80}=1-25 \mu\text{m}$ )
- **Vignati et al. (2001)** : Somme de fonctions log normales dépendant de la taille des particules ( $r_{80}=0.04-13 \mu\text{m}$ ) et du vent ( $U=6-17 \text{ m.s}^{-1}$ )
- **De Leeuw et al. (2003)** : Somme de fonctions log normales dépendant de la taille des particules ( $r_{80}=0.063-7.996 \mu\text{m}$ ) et du vent ( $U=0-9 \text{ m.s}^{-1}$ )
- **Gong (2003)** : Modification de Monahan et al. (1986) ( $r_{80}=0.07-0.2 \mu\text{m}$ )
- **Mårtensson et al. (2003)** : Produit du whitecap fonction du vent et d'une fonction linéaire de la température de l'eau de mer où les coefficients sont des polynômes dépendant de la taille des particules ( $D_d=0.02-2.8 \mu\text{m}$ )
- **Clarke et al. (2006)** : Produit du whitecap fonction du vent et de polynômes fonction de la taille des particules ( $D_d=0.01-8 \mu\text{m}$ )
- **Sofiev et al. (2011)** : Produit de fonctions décrivant le whitecap, la salinité, la température de l'eau et d'une fonction dépendant de la taille des particules ( $D_d=0.01-10 \mu\text{m}$ )

Il est possible de combiner ces différentes fonctions sources avec les expressions de la fraction de couverture moutonneuse suivantes :

- **Tang (1974)** : Fonction puissance dépendant du vent
- **Monahan & Ó Muircheartaigh (1980)** : Fonction puissance dépendant du vent
- **Kraan et al. (1996)** : Fonction puissance dépendant de l'âge des vagues
- **Hanson & Phillips (1999)** : Fonction puissance dépendant du vent
- **Lafon et al. (2004)** : Fonction puissance dépendant de l'âge des vagues

## 4.3 Paramétrisation du modèle

Dans un modèle de source et de transport des aérosols marins, trois points sont essentiels dans la paramétrisation du modèle : le flux de dépôt, le flux de production et l'initialisation du modèle avec un profil vertical de concentration à l'entrée du domaine de calculs.

### 4.3.1 Le flux de dépôt

L'utilisateur peut choisir entre la vitesse de dépôt de Fairall & Davidson (1986), FD86, et la vitesse de dépôt de Vignati et al. (2001), V01. La Figure 4-4 représente les vitesses de dépôt calculées par Fairall & Davidson (1986) et Vignati et al. (2001) en fonction de la vitesse du vent pour des particules d'un rayon de  $1\ \mu\text{m}$  et de  $5\ \mu\text{m}$ .

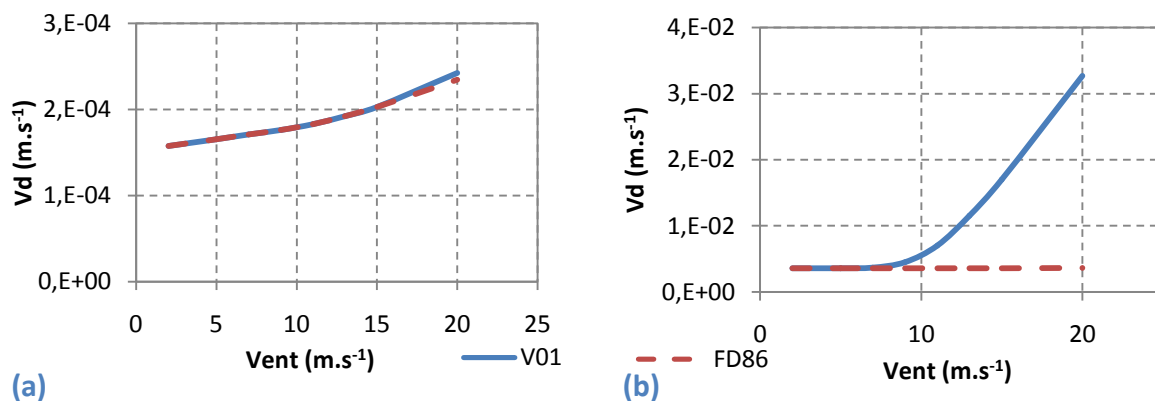


Figure 4-4 : Vitesse de dépôt en fonction de la vitesse du vent pour des particules d'aérosols de  $1\ \mu\text{m}$  (a) et  $5\ \mu\text{m}$  (b)

La vitesse de dépôt augmente lorsque le vent se renforce. Les vitesses de dépôt V01 et FD86 sont très proches pour des particules de  $1\ \mu\text{m}$ . Cependant, pour des particules de  $5\ \mu\text{m}$ , V01 augmente fortement avec la vitesse du vent alors que la vitesse de dépôt de FD86 croît très faiblement avec la vitesse du vent (pour un vent de  $20\ \text{m.s}^{-1}$ , la vitesse de V01 est dix fois plus grande que pour FD86). Cette différence vient du terme  $10^{-3/S_t}$  dans  $k'_d$  (4-16) qui n'apparaît que dans V01. Le terme peut varier entre 0 et 1 alors que le terme  $S_c^{1/2}$  vaut environ  $10^{-3}$  pour  $1\ \mu\text{m}$ .

On effectue des simulations avec MACMod en utilisant la fonction source de Monahan et al. (1986), et les deux formes de flux de dépôt. La Figure 4-5 représente la concentration en fonction de la vitesse du vent pour les deux expressions du flux de dépôt pour des particules de  $1$  et  $5\ \mu\text{m}$ . Les vitesses de dépôt de V01 et FD86 sont très similaires pour les particules de  $1\ \mu\text{m}$ , le choix de la formulation du flux de dépôt influence peu les résultats. Pour les particules de  $5\ \mu\text{m}$ , lorsque le vent augmente les concentrations modélisées avec les deux formulations divergent. On évalue le facteur d'écart à 7 pour un vent de  $10\ \text{m.s}^{-1}$  et 50 pour un vent de  $20\ \text{m.s}^{-1}$ . La concentration tend

à décroître en fonction du vent lorsque le modèle utilise la vitesse de dépôt de Vignati et al. (2001), car celle-ci augmente dans de fortes proportions. Or, on admet généralement :  $\ln N = a_N U + \ln N_0$ , où  $U$  est la vitesse du vent,  $N$  la concentration en particules,  $N_0$  le bruit de fond et  $a_N$  la pente qui est positive même pour les grosses particules (Lewis & Schwartz, 2004). On préférera alors utiliser la vitesse de dépôt de Fairall & Davidson (1986) pour les simulations effectuées avec MACMod.

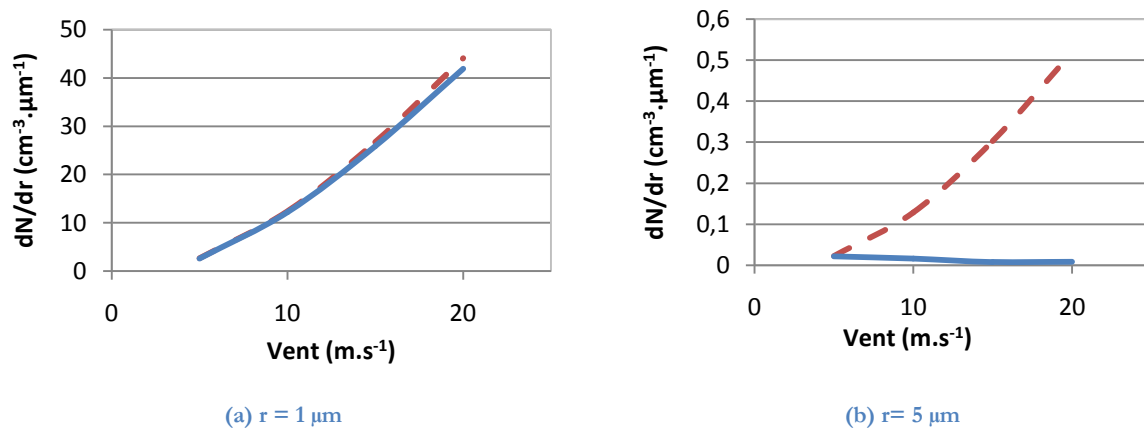


Figure 4-5 : Concentration MACMod en fonction du vent pour les vitesses de dépôt de Vignati et al. (2001) en bleu et Fairall & Davidson (1986) en rouge pointillé

### 4.3.2 Fonction Source/Flux de production d'aérosols

Durant la campagne MIRAMER (cf. Chapitre 3), des mesures de distribution en taille d'aérosols ont été acquises sur le navire Atalante dans la baie de Toulon-Hyères. Nous sélectionnons 3 séries de données pour les conditions de vent et de fetch suivantes :

- $U=4.6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  et  $X=130 \text{ km}$
- $U=9.8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  et  $X=350 \text{ km}$
- $U=11.8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  et  $X=300 \text{ km}$

#### a. Comparaison flux théorique - flux expérimental

Dans un premier temps, nous comparons le flux expérimental à différentes formulations du flux théorique (Monahan et al., 1986 ; Vignati et al., 2001 ; Gong et al., 2003 ; De Leeuw et al., 2003 ; Smith et al., 1993 ; Sofiev et al., 2011). Les expressions sont données en Annexe 3.

Le flux expérimental est évalué avec la méthode d'équilibre. On suppose les hypothèses réalisées, soit un état stationnaire et une homogénéité horizontale. Le flux est décrit par la formulation de Hoppel (2002) qui s'applique pour les particules comprises entre 1 et 10  $\mu\text{m}$ . Il s'écrit :

$$\frac{dF}{dr_{80}} = \frac{V_g}{\left(\frac{\delta}{z_{ref}}\right)^{\frac{V_g}{X}}} \times \frac{dN}{dr_{80}} \quad (4-31)$$

où  $V_g$  est la vitesse gravitationnelle,  $\delta$  la hauteur de la fonction source,  $z_{ref}$  la hauteur de référence et  $X = \beta \kappa u_*$  est le paramètre de mélange où  $\beta$  est un facteur qui représente la différence entre la diffusion turbulente de la quantité de mouvement et celle des aérosols.

La Figure 4-6 représente différents flux de production en particules d'aérosols en fonction du rayon à 80% d'humidité relative pour un vent de  $10 \text{ m.s}^{-1}$  et le flux expérimental (campagne MIRAMER). Nous constatons des différences de flux allant jusqu'à des facteurs d'ordre  $10^4$ . Le flux expérimental varie entre  $10^2$  et  $10^3 \text{ m}^2.\mu\text{m}^{-1}.\text{s}^{-1}$ . Monahan et al. (1986) semble fournir les meilleures estimations de ce flux pour les particules de plus de  $3 \mu\text{m}$ . Sofiev et al. (2011) semble plus correct pour les particules comprises entre 1 et  $3 \mu\text{m}$ .

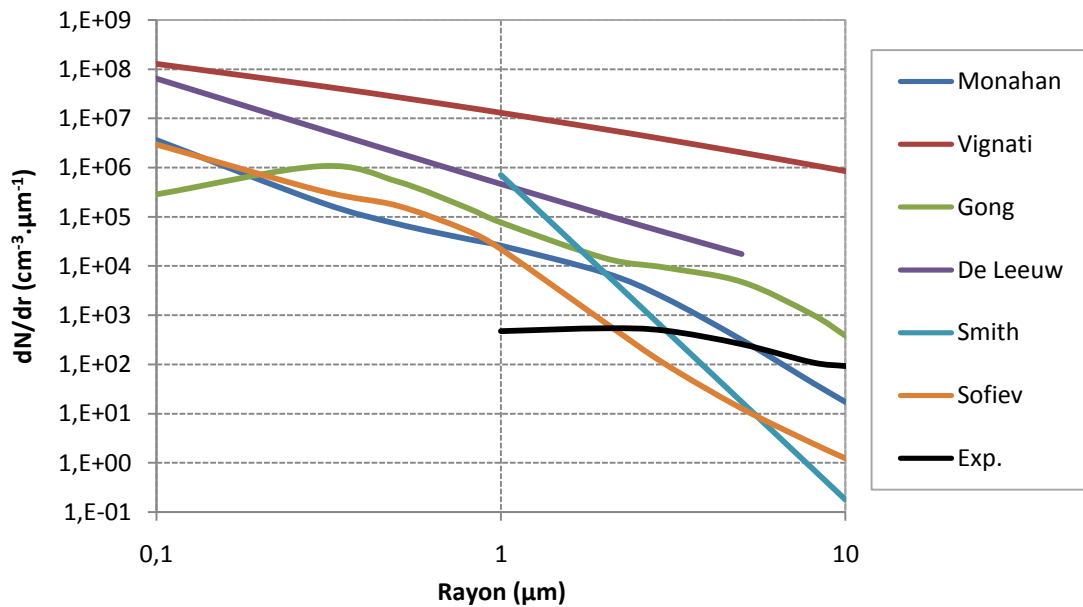


Figure 4-6 : Flux de production de particules marines pour un vent de  $10 \text{ m.s}^{-1}$

## b. Comparaison concentration estimée par MACMod - mesures

Dans un second temps, on effectue des simulations avec MACMod en utilisant les différentes fonctions sources (Monahan et al., 1986 ; Vignati et al., 2001 ; Gong et al., 2003 ; De Leeuw et al., 2003 ; Smith et al., 1993 ; Sofiev et al., 2011). Nous utilisons la formulation du whitecap de Monahan & Ó Muircheartaigh (1980).

La Figure 4-7 représente la concentration en particules en fonction de leur taille pour trois conditions de fetches et de vent. Les résultats varient suivant le terme source utilisé. Sofiev et al. (2011) et Monahan et al. (1986) semblent fournir les meilleurs résultats. Cependant, les modes des

particules ne sont pas respectés. Les mesures possèdent un mode à 2.5  $\mu\text{m}$  alors qu'avec les fonctions sources de Monahan et al. (1986) et Sofiev et al. (2011), les modes sont à environ 1 et 0.3  $\mu\text{m}$ , respectivement.

Le facteur de confiance à 68%  $f_{conf}$  est défini tel que :

$$f_{conf} = \max \left[ \frac{m \pm \sigma}{\sqrt{n}} \right] \quad (4-32)$$

avec  $m$  la moyenne du rapport de concentration modélisée sur concentration mesurée de la série de données,  $\sigma$  l'écart type et  $n$  le nombre de données. Si le facteur est inférieur à 1, on prend son inverse. On considère le facteur correct lorsqu'il est inférieur à 3 et idéal lorsqu'il vaut 1.

Le Tableau 4-1 regroupe les valeurs du facteur de confiance (68%) pour chacune des fonctions sources utilisées. Le facteur de confiance varie de  $10^5$  pour Vignati et al. (2001) à moins de 10 pour Sofiev et al. (2011). Le choix de la fonction source est donc déterminant dans les calculs du modèle. Les fonctions sources les plus adaptées à notre zone d'étude sont donc Sofiev et al. (2011) et Monahan et al. (1986) où les facteurs de confiance sont respectivement 7 et 12.

Vent (m.s <sup>-1</sup> )	Fonction Source					
	Monahan	Vignati	Gong	De Leeuw	Smith	Sofiev
9.8	14	122 307	73	333	623	10
4.6	4	114 747	17	30	355	3
11.8	14	190 767	102	285	264	8
<b>Données complètes</b>	12	144 795	73	254	426	7

**Tableau 4-1 : Facteur de confiance à 68% entre les concentrations mesurées et les concentrations calculées par MACMod utilisant différentes fonctions sources.**

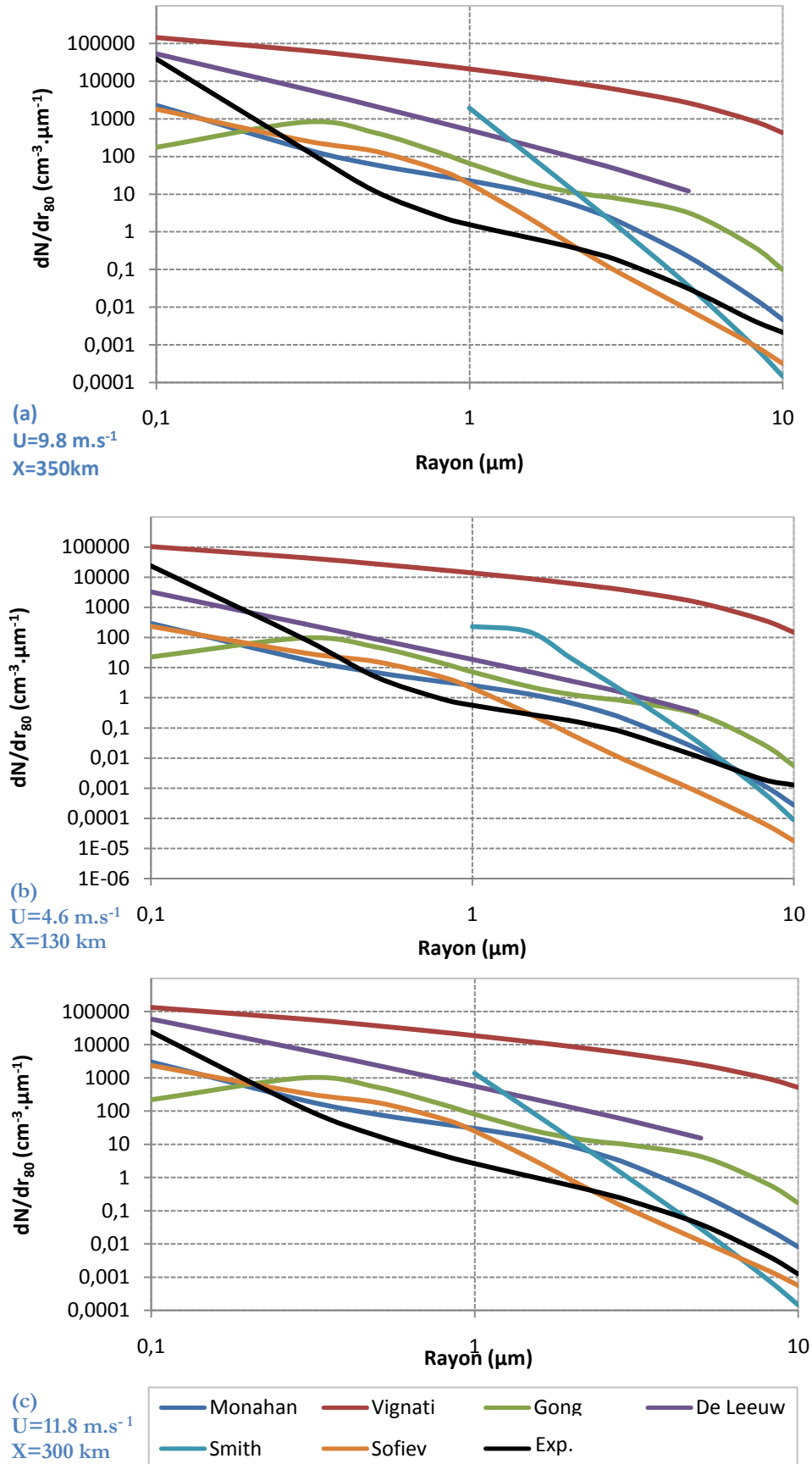


Figure 4-7 : Comparaison entre les concentrations calculées par MACMod utilisant différentes fonctions sources et les mesures (Atalante, campagne MIRAMER)



### c. Le taux de déferlement

Sur la Figure 4-8 est représentée en fonction du vent, la fraction de couverture moutonneuse suivant les formulations de Monahan & Ó Muircheartaigh (1980), Lafon et al. (2004) et Kraan et al. (1996). Sur la Figure 4-9, est tracée la concentration en particules calculée par MACMod et utilisant la fonction source de Monahan et al. (1986) combinés à chacune des formulations du whitecap, pour des particules de  $1\text{ }\mu\text{m}$  et une hauteur de vagues de 2 m. Les concentrations modélisées avec les formulations de Lafon et al. (2004) et Monahan et Ó Muircheartaigh (1980) sont très proches et sont supérieures à celles utilisant la formulation de Kraan et al. (1996). Cet écart est d'autant plus important lorsque la vitesse du vent augmente, il dépasse un facteur 2 lors d'un vent de  $10\text{ m.s}^{-1}$  (Figure 4-9). Le modèle est donc moins sensible au choix de la formulation du whitecap qu'au flux de production. Cependant, les modifications des résultats dues à la modification du terme du whitecap ne sont pas négligeables, il convient alors de choisir la formulation la plus adaptée.

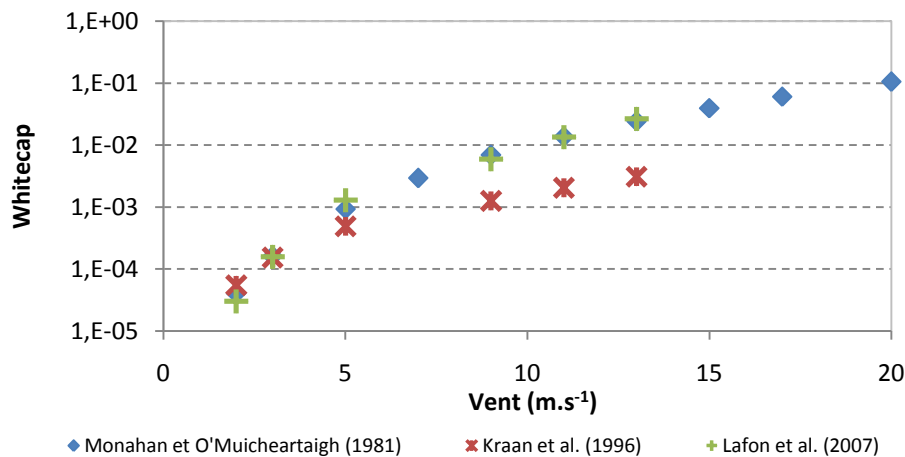


Figure 4-8 : Fraction de couverture moutonneuse en fonction du vent

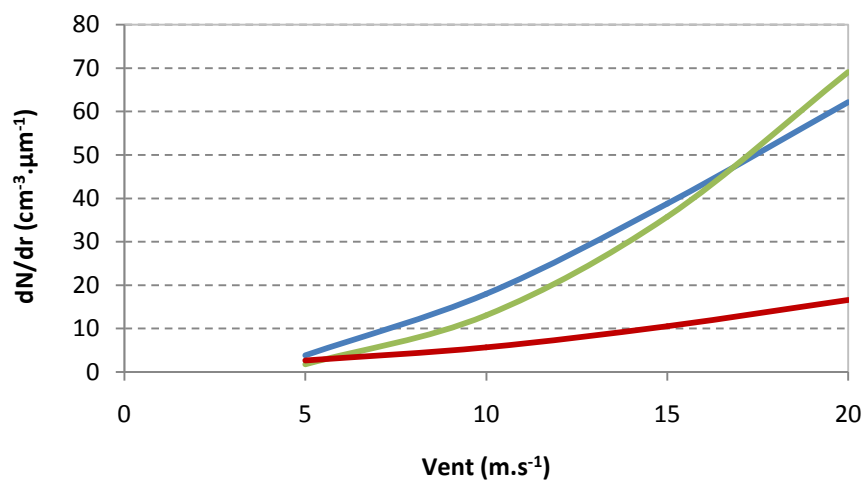


Figure 4-9 : Concentration en fonction de la vitesse du vent pour des particules de  $1\text{ }\mu\text{m}$

### 4.3.3 Le profil vertical d'entrée de concentration

Le modèle peut être initialisé par un profil vertical de concentration à l'entrée du domaine (en  $x=0$ ) et constant au cours du temps. MACMod propose différentes formes de profils verticaux d'entrée :

- Nul
- Constant suivant la verticale
- Issue d'un fichier
- Profil logarithmique déterminé à partir de la concentration à 10 m choisie par l'utilisateur
- Profil logarithmique déterminé à partir de la concentration à 10 m fournie par MEDEX

On effectue des simulations avec MACMod avec deux types de profils verticaux : logarithmique et constant. Les conditions de simulations sont identiques, avec une concentration en amont à 10 m de  $2.5 \text{ part.cm}^{-3}.\mu\text{m}^{-1}$ , un vent de  $10 \text{ m.s}^{-1}$ , un rayon des particules de  $1 \mu\text{m}$  et un flux de production nul le long du fetch. La Figure 4-10 représente les distributions verticales en aval d'un fetch 100 km suivant les deux profils d'entrée. A 10 m d'altitude, le rapport entre les concentrations des profils log et constant est de l'ordre de 3.27 pour un fetch de 100 km alors qu'à 10 km il est de 1.55. Ce rapport augmente avec l'altitude atteignant des valeurs de l'ordre de 40. Le choix du profil vertical joue donc un rôle important dans les calculs de concentration effectués par MACMod.

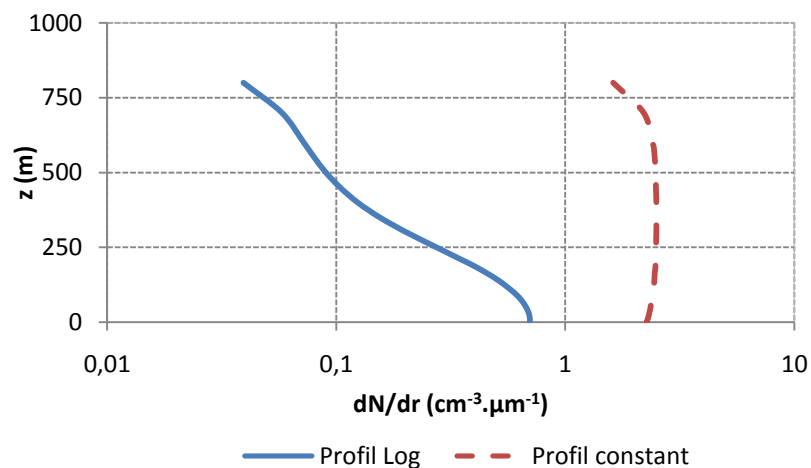


Figure 4-10 : Concentration en fonction de l'altitude pour deux profils de concentrations initiaux ( $U=10\text{m.s}^{-1}$ ,  $r=1\mu\text{m}$ )

### 4.3.4 Influence des paramètres et options

Le modèle dispose de nombreuses options et paramètres pouvant influencer de manière plus ou moins importante sur les résultats des simulations. Nous effectuons des simulations utilisant les différentes options puis nous les comparons à une simulation de référence décrite dans le Tableau 4-2. Pour chaque simulation, un seul paramètre diffère de la simulation de référence : coefficient de frottement, hauteurs de la CLS ou CLAM, densité des particules et température de l'eau.

Hauteur de la CLAM	1000 m
Hauteur de la CLS	10 m
Vitesse du vent à 10 m	10 m.s <sup>-1</sup>
Fonction source	Monahan et al. (1986)
Coefficient de frottement	Large et Pond (1981)
Flux de dépôt	Fairall & Davidson (1986)
Formulation de la couverture moutonneuse	Monahan et Ó'Muichertaigh (1981)
Température de l'air	293 K
Température de l'eau	293 K
Densité des particules	1072
Profil vertical d'entrée	nul
Fetch	100 km
Zone de surf	aucune

**Tableau 4-2 : Paramétrisation de la simulation de référence**

L'écart relatif est déterminé entre chaque simulation et la simulation de référence. Les résultats sont regroupés dans le Tableau 4-3. Les écarts entre les concentrations modélisées sont relativement faibles, inférieurs à 30 %, soit équivalent à un facteur 1.3. Or, le choix de la fonction source génère des différences de concentration allant jusqu'à des facteurs supérieurs à 10<sup>3</sup>, voire 10<sup>4</sup>. Le choix des paramètres de simulation est donc significatif lorsque la fonction source est correctement choisie.

Paramètre/rayon (µm)	0.1	0.5	1	5
Cd Hellermann & Rosenstein			13.56	10.34
Densité 2000	0.01	0.11	0.39	13.81
Densité 1025	0.001	0.08	0.11	2.97
CLS 30 m	23.66	28.17	28.83	33.33
CLAM 400 m	0.31	0.05	0.39	0.26
dT = -5	9.47	10.78	10.74	7.26
dT = 5	17.90	21.94	22.31	11.29

**Tableau 4-3 : Erreur relative entre la simulation de référence et les simulations test**

## 4.4 Répartition verticale des aérosols

### 4.4.1 Profils verticaux modélisés par MACMod

On effectue une série de simulations MACMod avec comme condition initiale une atmosphère propre. Sur la Figure 4-11, on représente la concentration en fonction de l'altitude pour différentes tailles de particules (a), différentes longueurs de fetch (b), différentes vitesses de vent lorsque le fetch est de 100 km, dans les cas de flux de production en particules fonction du vent (c), des flux de particules constants (ne dépendant pas du vent) (d) et pour différents écarts de température entre l'air et l'eau, l'ASTD, (e).

Sur la Figure 4-11a, on constate que les particules les plus grosses restent dans les basses altitudes. De plus, l'allure des profils verticaux de concentration est similaire quelque soit la taille des particules (Figure 4-11). Or, on s'attendrait plutôt à ce que le profil soit droit pour les petites particules. On peut supposer que ceci provient du temps de simulation. En effet, les simulations sont effectuées sur une vingtaine d'heures alors que les petites particules résident plusieurs semaines. Les profils droits que l'on retrouve dans la littérature sont probablement dus à une accumulation de particules sur plusieurs jours, voire plusieurs semaines.

La longueur de fetch influence l'allure des profils verticaux de concentration (Figure 4-11b) et l'accumulation de particules dans la CLAM. La longueur de fetch favorise l'élévation des particules. En effet, lorsque le fetch est de 100 km, on observe une concentration de  $0.01 \text{ part.cm}^{-3}.\mu\text{m}^{-1}$  à 10 m alors que pour un fetch de 1000 km, elle est 2.7 fois plus élevée. Les aérosols ont plus le temps de monter dans l'atmosphère

La production en particules est liée à la vitesse du vent. Plus le vent est fort, plus le gradient vertical de concentration en particules sera prononcé (Figure 4-11c). Cependant, lorsque le flux de production ne dépend plus du vent (Figure 4-11d), la concentration en particules a tendance à être plus élevée lorsque le vent diminue, dans les premières centaines de mètres. En effet, on observe un facteur 2 entre les concentrations pour des vents de  $10 \text{ m.s}^{-1}$  et  $20 \text{ m.s}^{-1}$ .

La stratification thermique influence essentiellement l'altitude atteinte par les particules (Figure 4-11e). Plus l'atmosphère est instable, plus les particules s'élèvent et inversement, une atmosphère stable ralentit l'ascension des particules. La CLAM est plus mélangée en cas d'instabilité. Ce résultat avait aussi été trouvé par Tedeschi & Piazzola (2011).

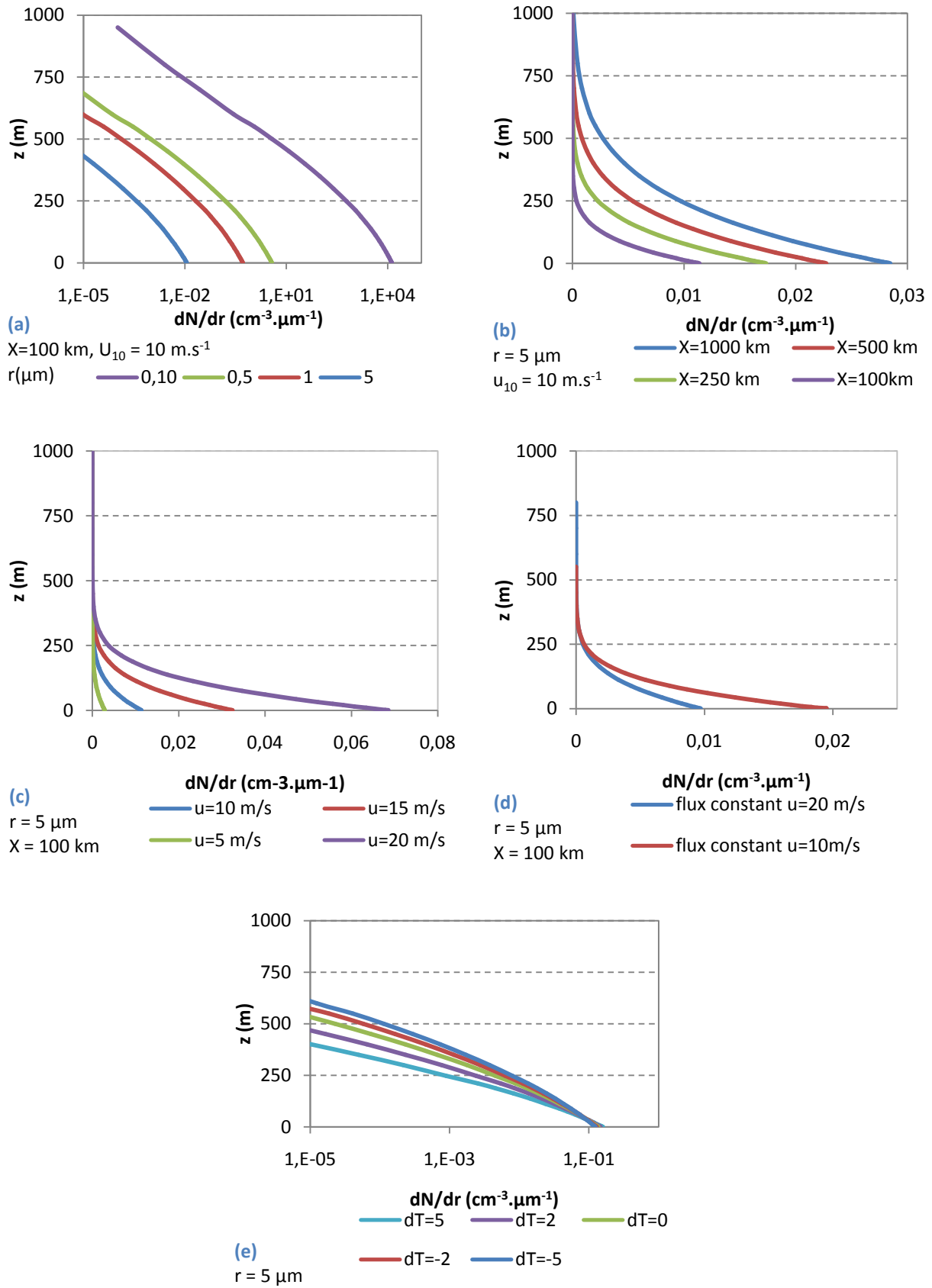


Figure 4-11 : Profil vertical estimé par MACMod pour différentes taille de particule (a), pour différentes valeurs du fetch (b), du vent pour un flux de production fonction du vent (c) et pour un flux constant (d) et différents écarts de température entre l'air et l'eau (e), pour des particules de  $5 \mu\text{m}$ .

#### 4.4.2 Comparaison profils théoriques-MACMod

On effectue des simulations MACMod pour un vent de  $10 \text{ m.s}^{-1}$  et des conditions de stabilité neutre. Les sorties du modèle sont comparés à différents profils verticaux : De Leeuw (1986), Andreas et al., (2007) et le profil théorique décrit par l'équation (2-24). Pour les particules de  $1 \mu\text{m}$  et  $5 \mu\text{m}$ , le paramètre d'échelle est pris à  $500 \text{ m}$  et  $100 \text{ m}$ , respectivement.

La Figure 4-12 présente les profils verticaux théoriques et modélisés par MACMod pour des particules de  $1 \mu\text{m}$  (a) et  $5 \mu\text{m}$  (b). La concentration en particules estimée par MACMod décroît rapidement en fonction de l'altitude, contrairement au profil théorique et au profil de Andreas et al. (2007). Quand au profil de De Leeuw (1986), il décroît très fortement comparé au profil simulé. Les profils théoriques utilisés pour faire ces comparaisons dépendent de l'altitude, de la taille des particules et de la vitesse de friction ou d'un paramètre d'échelle. Or nous avons vu que le fetch, les conditions de stabilité thermique et les conditions antérieures (temps de résidence long des petites particules) modifient l'allure du profil vertical. Le profil ne peut donc pas uniquement s'exprimer en fonction de la taille des particules et du vent.

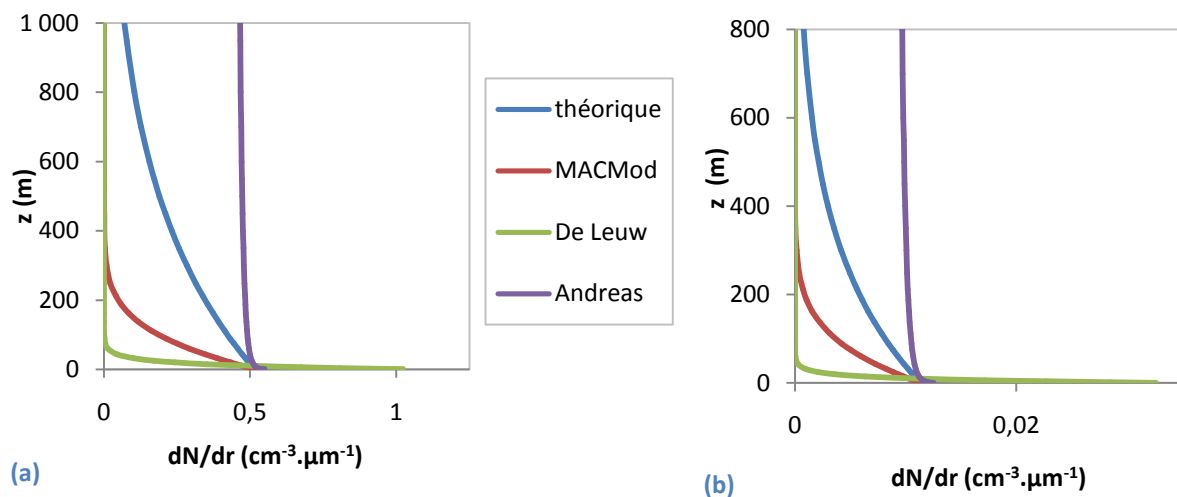


Figure 4-12 : Comparaison profil vertical théorique et modélisé par MACMod dans la CLAM pour des particules de  $1 \mu\text{m}$  (a) et  $5 \mu\text{m}$  (b)

Sur la Figure 4-13, on représente le profil simulé par MACMod et le profil théorique décrit par l'équation (2-24) pour différentes valeurs du paramètre d'échelle  $H_p$  et pour des particules de  $1 \mu\text{m}$ , un vent de  $10 \text{ m.s}^{-1}$  et un fetch de  $100 \text{ km}$ . Le profil simulé tend vers le profil théorique pour un paramètre d'échelle de  $80 \text{ m}$ . Dans le cas d'un fetch de  $1000 \text{ km}$ , le paramètre d'échelle vaut  $300 \text{ m}$ . Ces paramètres d'échelle sont relativement bas puisque les simulations sont effectuées pour des conditions de stabilité neutre et une vitesse verticale du vent nulle. En effet, en prenant la composante verticale du vent à  $0.01 \text{ m.s}^{-1}$ , pour un fetch de  $100 \text{ km}$ , le paramètre d'échelle devient  $150 \text{ m}$ , soit presque le double.

Le profil vertical de concentration décrit par l'équation (2-24) semble mieux décrire la répartition verticale des aérosols calculée par MACMod. Par ailleurs, ce profil semble idéal pour initialiser le modèle car il permet de faire varier la diminution de concentration avec l'altitude en fonction des conditions de simulation en jouant sur le paramètre d'échelle. C'est pourquoi, une nouvelle procédure a été mise en place afin de déterminer le profil vertical à partir de la concentration en particules à 10 m.

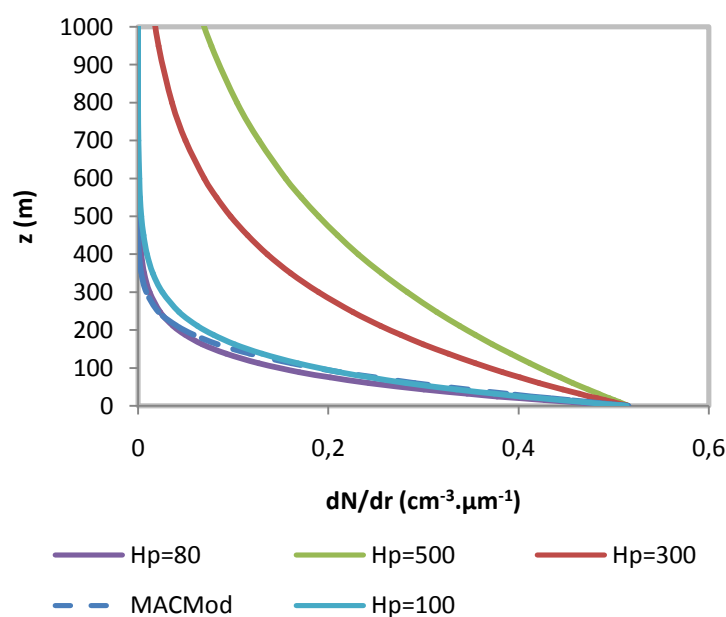


Figure 4-13 : Comparaison profil vertical modélisé par MACMod et théorique pour différentes valeurs du paramètre d'échelle et des particules de 1 µm.

## 4.5 Synthèse

Le modèle MACMod comprend un ensemble de paramètres et options à déterminer en fonction des conditions météorologiques, océanographiques et de la zone d'étude. Le flux de production, le flux de dépôt et le profil d'initialisation de concentration en particules à l'entrée du domaine sont à déterminer avec le plus grand soin car ils influencent fortement les calculs du modèle. En effet, suivant la fonction source utilisée, la concentration estimée par le modèle peut varier d'un facteur  $10^3$  voire plus. De même, le flux de dépôt de Vignati et al. (2001) entraîne un dépôt jusqu'à 10 fois plus important que le flux de Fairall & Davidson (1986) et notamment pour des grosses particules dans des conditions de vent fort. Le choix de la forme du profil d'entrée de concentration n'influence les résultats que dans le cas de fetches longs et pour des altitudes grandes devant 10 m. En ce qui concerne les autres options et paramètres, dans l'ensemble les résultats des simulations montrent que les écarts sont inférieurs à un facteur de 1.3.

La répartition verticale de la concentration en aérosols calculée par MACMod est de forme exponentielle. En comparant les sorties du modèle avec des profils théoriques, nous avons constaté que l'équation (2-24) semble le mieux représenter la répartition verticale. De plus, elle est idéale pour déterminer les profils d'initialisation puisqu'elle peut s'adapter au cas étudié (taille des particules, fetch, vent) en faisant varier le paramètre d'échelle.

En comparant les sorties du modèle aux mesures, nous avons constatés que les fonctions sources de Monahan et al. (1986) et Sofiev et al. (2011) fournissent des résultats corrects pour la zone côtière méditerranéenne. Cependant, les distributions en taille des particules calculées par le modèle dans les deux cas diffèrent des mesures en termes de rayon modal et de valeur. La première fonction source a été établie en laboratoire avec de l'eau artificielle et la deuxième a été établie grâce à des données acquises en Atlantique nord et Europe de l'ouest. Or, notre zone d'étude se situe en Méditerranée où les conditions météo et océanographiques sont différentes. Pour améliorer la modélisation du transport et de la source des aérosols en zone côtière méditerranéenne, il est donc nécessaire de mettre en place une fonction source plus adaptée à cette région. Ceci sera fait dans le Chapitre 6. Pour cela, il est important de préalablement étudier les populations d'aérosols marins se formant et transitant au dessus de la mer dans notre zone d'étude.



# Chapitre 5. Caractérisation de l'aérosol marin en zone côtière méditerranéenne

## 5.1 Introduction

La production, le transport ou le dépôt des particules d'aérosols marins dépend de nombreux paramètres physiques météorologiques et/ou océanographiques. Ce chapitre est consacré à l'étude de l'influence de ces différents paramètres sur la concentration en aérosols, et notamment l'aérosol marin, dans la baie de Toulon-Hyères. Cette étude se base sur les mesures *in situ* effectuées durant la campagne MIRAMER 2008. Lors de cette campagne, le navire océanographique Atalante et la station de l'île de Porquerolles ont été équipés de sondes optiques granulométriques et de capteurs météorologiques. Les mesures du champ de vagues ont été fournies par PREVIMER à l'aide d'une bouée située à 5 km au sud de l'île de Porquerolles.

## 5.2 Conditions expérimentales

La campagne de mesures MIRAMER 2008 s'est déroulée du 18 au 28 mai 2008, période pendant laquelle il a été rencontré différentes conditions météorologiques et océanographiques.

### 5.2.1 Conditions météorologiques

#### a. Porquerolles

Sur l'ensemble de la campagne expérimentale, le vent s'est principalement orienté autour de deux directions (Figure 5-1) : de secteur ouest ( $250^\circ$ ) et de secteur nord-est ( $50^\circ$ ). La première correspond à plusieurs centaines de kilomètres de fetch (infini), quant à la deuxième, elle implique un fetch relativement court, moins d'une dizaine de kilomètres. Les vents de secteur ouest se

chargent généralement davantage en aérosols marins. La gamme de vitesse de vent durant la campagne se situe entre 0 et 18  $\text{m.s}^{-1}$ .

Sur la Figure 5-2, est représentée la fréquence du vent pour différents intervalles de vitesses et en fonction de trois directions : nord-est ( $50^\circ$ ), sud-ouest ( $250^\circ$ ) et les autres directions. Les vents de secteurs sud-ouest sont modérés, dans environ 40% des cas ils sont compris entre 5 et 10  $\text{m.s}^{-1}$ . Les vents orientés nord-est observés durant cette période sont relativement plus forts. Ils dépassent régulièrement 10  $\text{m.s}^{-1}$  (40%) voire 15  $\text{m.s}^{-1}$ . Les vents d'autres secteurs montrent des vitesses plus faibles avec plus de 50% des cas inférieurs à 5  $\text{m.s}^{-1}$ .

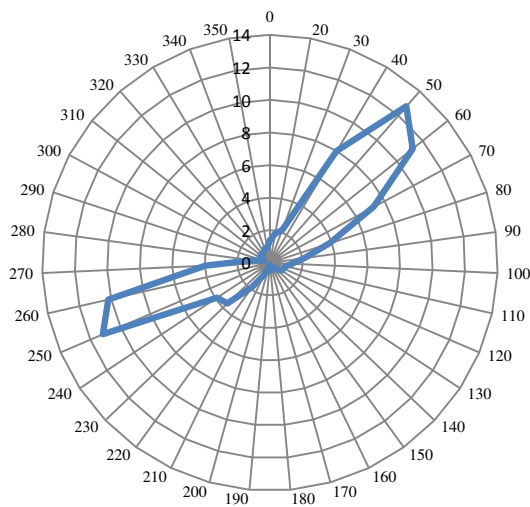


Figure 5-1 : Direction du vent à Porquerolles du 17 au 26 mai 2008

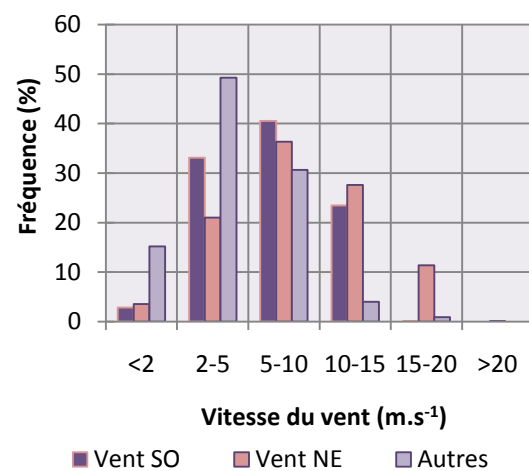


Figure 5-2 : Répartition des intervalles de vitesses de vent du 17 au 26 mai 2008 à Porquerolles

La Figure 5-3 illustre la fréquence des intervalles d'humidité relative pour les différents régimes de vent. Les vents N-E ont tendance à être plus humides, avec dans environ 30% des cas, une humidité relative dépassant 85%. Cependant, on remarque le nombre important de cas où l'humidité est inférieure à 65% (environ 30% des cas). Ceci apparaît lorsque la vitesse du vent est élevée ( $>10\text{m.s}^{-1}$ , voir Figure 5-4). Les vents S-O sont plus secs mais restent relativement chargés en humidité, dans 50% des cas l'humidité est comprise entre 70% et 80%. En effet, durant leurs parcours, les masses d'air survolent la Méditerranée sur plusieurs centaines de kilomètres en se chargeant en particules d'aérosols marins. Les gouttelettes s'équilibrent avec l'humidité ambiante par l'évaporation de leur eau ce qui conduit à une augmentation de l'humidité relative.

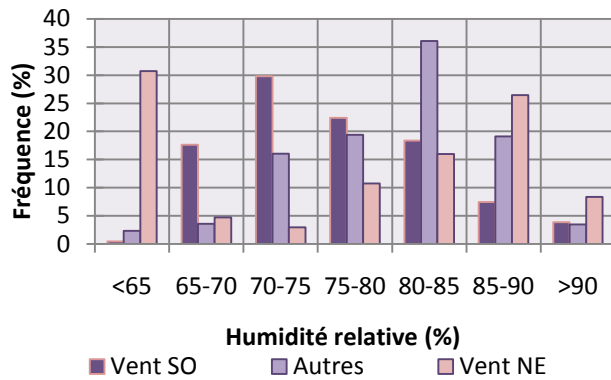


Figure 5-3 : Humidité relative en fonction du régime de vent sur l'île de Porquerolles, du 17 au 23 mai

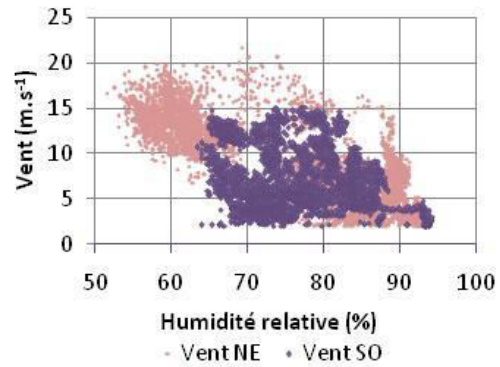


Figure 5-4 : Vents NE et SO en fonction de l'humidité relative

La Figure 5-5 présente l'évolution temporelle des directions et intensités du vent durant la période de mesures. Les variations diurnales sont clairement visibles, le vent s'atténuant durant la nuit. Cette diminution est intéressante car elle nous permettra d'estimer le temps de résidence des particules dans l'atmosphère. L'humidité relative, dont l'évolution est présentée sur la Figure 5-6, tend à suivre les variations diurnes et nocturnes car elle est fonction de la température (elle augmente quand la température diminue). Les phénomènes de condensation sont à l'origine du grossissement des particules d'aérosols (*cf.* section 2.3.2b). Ainsi, ils jouent un rôle important dans les processus de transport des particules qui sont alors soumises davantage à la gravité. Inversement, lorsque la température augmente, l'eau des aérosols marins s'évapore, conduisant à une diminution de leur taille. La Figure 5-6 présente également la pression en fonction du temps. On remarque une succession de basse puis haute pression.

Cependant, seules les conditions météorologiques sur Porquerolles du 20 au 23 mai 2008 seront étudiées, les distributions granulométriques ayant été mesurées seulement pendant ces trois jours durant la campagne MIRAMER.

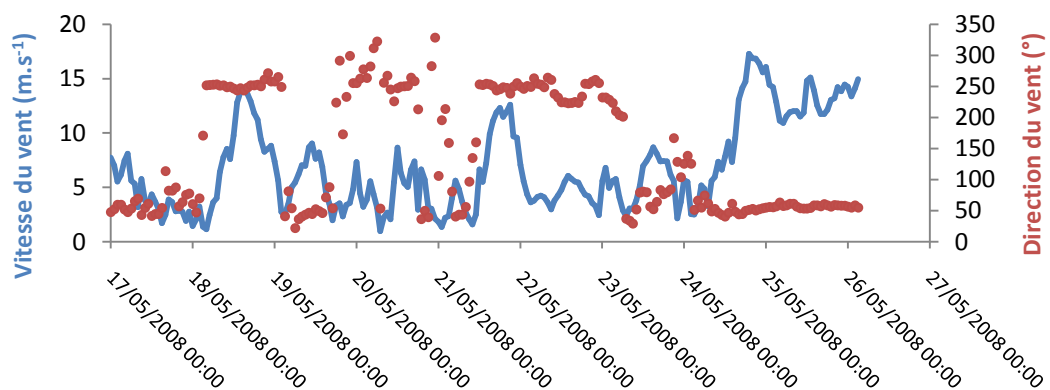


Figure 5-5 : Vitesse et direction du vent à Porquerolles du 17 au 26 mai 2008 (moyenne horaire)

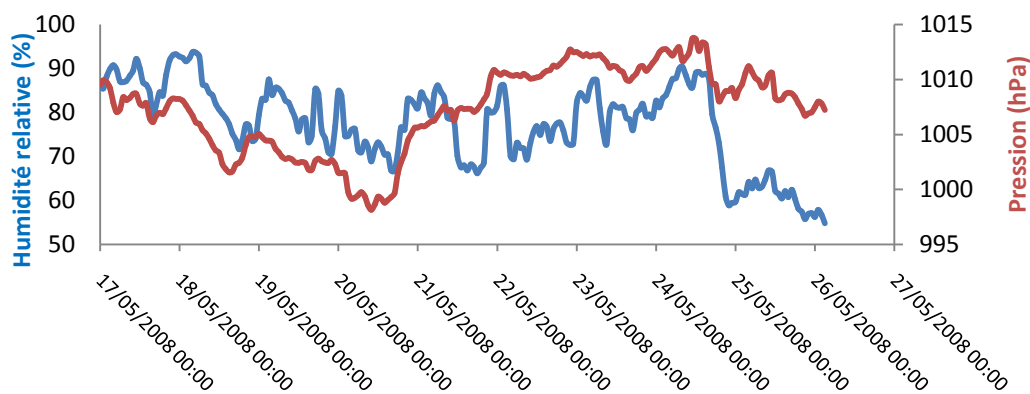


Figure 5-6 : Pression et Humidité relative à Porquerolles du 17 au 26 mai 2008

### b. Sur le bateau

Les stations effectuées par le navire océanographique Atalante se sont situées à des distances variant entre 10 et 100 km de l'île de Porquerolles (voir Figure 3-6). Nous verrons dans la section 5.3.2 que les conditions météorologiques rencontrées à Porquerolles et sur le navire sont quelque peu différentes, notamment en termes d'intensité et de direction du vent. Le Tableau 5-1 détaille les conditions météorologiques pendant les mesures effectuées sur le bateau.

De part la position géographique du navire et les différentes directions de vent, diverses conditions de fetches sont rencontrées, de quelques kilomètres à plusieurs centaines de kilomètres. Les conditions de stabilité atmosphériques sont généralement proches du neutre, excepté les 26 et 27 mai où elles sont particulièrement stables. De plus, le vent varie de 1 à 27.8  $\text{m.s}^{-1}$ . Ces mesures offrent donc un large panel de conditions de génération et de transport des particules d'aérosols marins.

## 5.2.2 Origine des masses d'air

La Figure 5-7 présente les rétrotrajectoires des masses d'air survolant la baie de Toulon Hyères du 18 au 28 mai 2008 (par ordre chronologique inversé). Les rétrotrajectoires sont calculées par HYSPLIT tous les jours à 12h durant la période d'étude. Elles représentent le trajet le plus probable qu'a parcouru une particule mesurée à un instant et une position donnés. Pour faciliter la lecture, on ne représente que trois ou quatre rétrotrajectoires par carte (bleue, rouge, verte et turquoise). Les symboles (carrés, triangles ou cercles) sur les trajectoires correspondent à la position de la particule toutes les 6h. Les masses d'air peuvent avoir diverses origines. Du 23 au 28 mai (première et deuxième carte), les masses d'air traversent la Méditerranée en longeant l'Espagne ou l'Italie, ou en survolant l'Afrique du Nord (le 25, trajectoire turquoise de la deuxième carte). Les 20 et 21 mai, les masses d'air survolent la France et l'Europe (trajectoires

bleu et rouge sur la troisième carte). Et enfin, les 18 et 19 mai, les masses d'air changent de direction au cours de la journée (trajectoires turquoise et verte sur la troisième carte) témoin d'une modification du champ de vent.

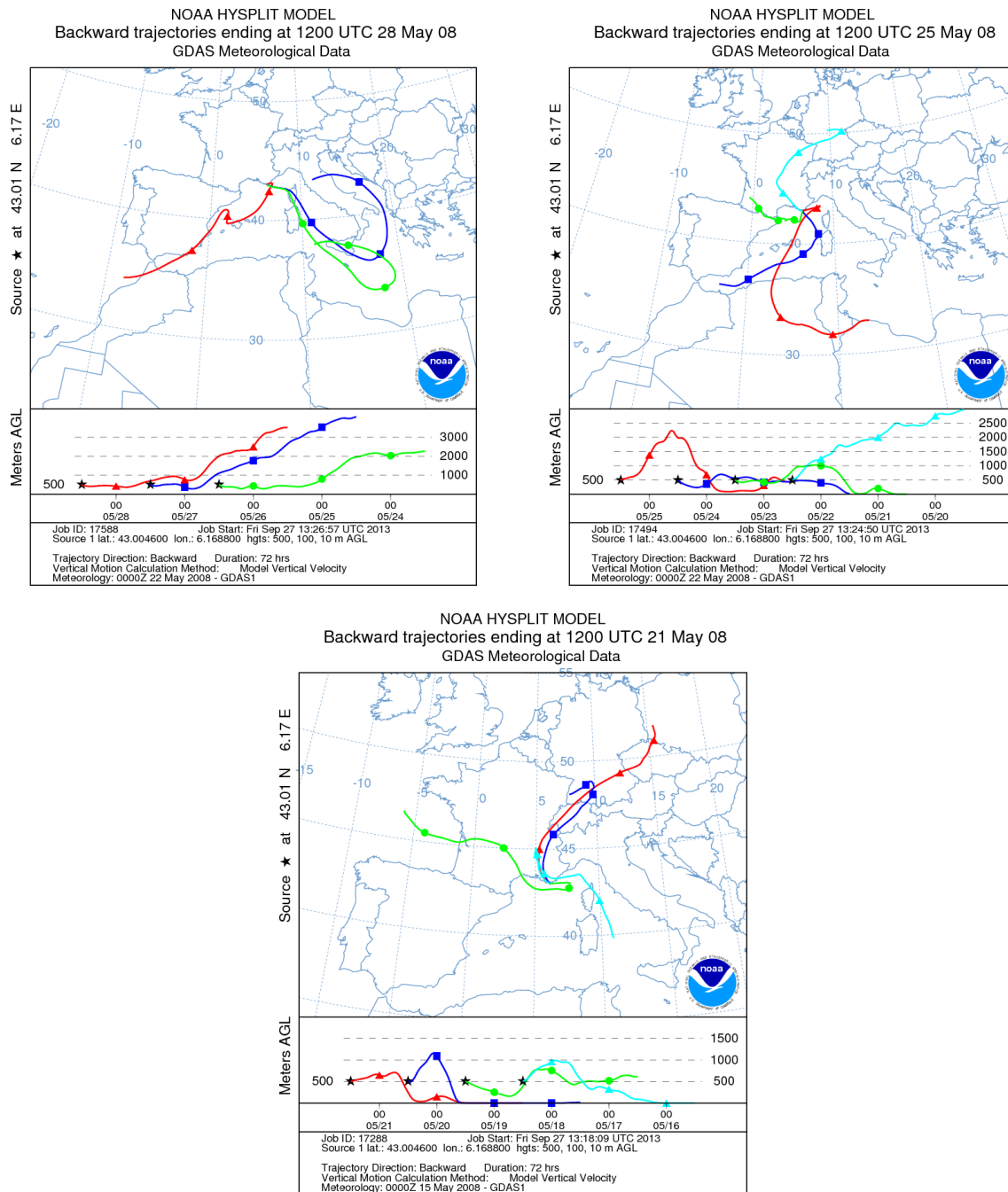


Figure 5-7 : Rétrotrajectoires des masses d'air du 18 au 28 mai 2008 dans la baie de Toulon Hyères (HYSPLIT)

N° Station	Date début (local)	Durée (min)	Direction Vent (°)	Vitesse Vent (m.s <sup>-1</sup> )	Pression (hPa)	Temp. air (°C)	Temp. mer (°C)	RH (%)	Commentaires
1	18/05/2008 12:15:00	20	273	10,81	1005,7	17,3	17,2	80	
2	18/05/2008 15:45:00	85	274	11,84	1005,2	17,8	17,5	76	ciel clair
3	18/05/2008 19:25:00	45	272	10,29	1005,3	18	17,1	73	ciel clair
4	19/05/2008 07:00:00	30	77	8,75	1004	17,4	17,5	86	Pluie dans la nuit Matin nuageux
5	19/05/2008 09:30:00	40	64	10,81	1004	17,5	17,6	83	Nuageux
6	19/05/2008 17:10:00	30	314	3,60	1003,8	18	17,3	79	Nuageux
7	20/05/2008 14:10:00	40	274	5,66	1001,4	19,9	17,6	56	vent modéré, léger whitecaps
8	20/05/2008 18:10:00	30	310	8,24	1002,6	19,5	18,1	69	Nuageux temps pluvieux
9	21/05/2008 09:40:00	20	202	1,03	1009,5	17	17,4	74	Pas de vent nuage en dégagement
10	21/05/2008 15:30:00	45	279	9,78	1010	18,2	18	65	Beau
11	22/05/2008 07:10:00	30	290	4,63	1012,6	17,7	17,6	66	ultra beau
12	22/05/2008 13:00:00	60	257	5,66	1014,3	17,8	17,8	76	ultra beau
13	22/05/2008 17:50:00	40	265	6,18	1014,1	18	17,9	76	beau ciel clair
14	23/05/2008 08:50:00	40	231	1,03	1013	17,8	17,8	73	ultra beau
15	24/05/2008 14:00:00	30	179	3,09	1014	17,2	17,3	92	brumeux nuage nous arrive dessus
16	26/05/2008 14:15:00	30	127	15,96	1008,2	22,1	17,3	55	vent mer agitée Marseille
17	27/05/2008 12:10:00	30	108	19,05	1003,8	23,9	17,4	45	mouillage nuit a la Ciotat mer agitée pointe 40noeuds
18	27/05/2008 15:05:00	30	110	27,80	1004	22,6	17,2	54	très agité
19	28/05/2008 08:30:00	30	358	1,03	1014,1	17,1	17,1	90	clair

Tableau 5-1 : Conditions météorologiques des différentes stations du bateau

### 5.2.3 Conditions « optiques »

L'étude des variations du coefficient d'Angström, noté  $\alpha$ , et l'épaisseur optique en aérosols (Aerosol Optical Depth, AOD) permettent d'obtenir des informations sur la nature des aérosols transitant dans l'atmosphère et ayant un impact radiatif dans le visible. L'épaisseur optique  $\tau$  mesure le degré de transparence de l'atmosphère, c'est-à-dire la perte d'énergie par diffusion ou absorption du rayonnement électromagnétique traversant l'atmosphère, et le coefficient d'Angström traduit la dépendance entre l'épaisseur optique d'un aérosol et la longueur d'onde. Ces paramètres sont fournis par le photomètre installé au SESDA, à St Mandrier (voir Figure 3-3). Dans le visible, l'AOD varie en  $\lambda^{-\alpha}$  (Van de Hulst 1981), où  $\lambda$  représente la longueur d'onde du rayonnement incident. La valeur du coefficient d'Angström  $\alpha$  est voisine de 1 pour une distribution log-normale centrée sur une taille moyenne de particules de quelques centièmes de microns. Le coefficient  $\alpha$  diminue lorsque la taille des aérosols augmente.

Toledano et al. (2007) ont caractérisé les différentes populations d'aérosols en fonction du coefficient d'Angström et de l'épaisseur optique (pour une longueur d'onde de 440 nm). Ses résultats sont représentés sur la Figure 5-8.

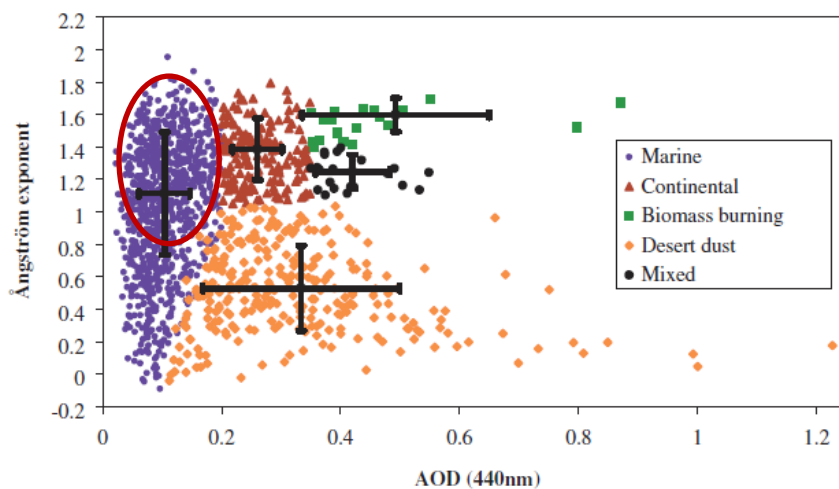


Figure 5-8 : Classification des aérosols en fonction du coefficient d'Angström et de l'AOD (Toledano et al., 2007)

Lors d'épisodes de poussières désertiques, qui sont en général des aérosols non-sphériques, on retrouve un grand AOD ( $> 0.5$ ) et un petit coefficient d'Angstrom ( $< 0.5$ ). Les particules continentales sont des petits aérosols ( $\alpha > 1$ ) de forme généralement non-sphérique. Toledano et al. (2007) supposent que les particules sont d'origine marine lorsque l'AOD est inférieur à 0.2, quelque soit la valeur du coefficient d'Angström. Nous émettons alors quelques réserves sur ses résultats puisque les particules marines sont de gros aérosols sphériques, donc, caractérisées par un coefficient d'Angström inférieur à 0.5. Lorsque ce coefficient dépasse 0.5, on peut supposer la présence de petites particules d'origine continentale naturelle ou anthropique. Sur la Figure 5-8, la

population de particules encerclée en rouge est donc probablement un mélange de particules continentales et marines. La majorité du spectre granulométrique des aérosols marins affectent plus particulièrement le rayonnement infrarouge. Suivant l'importance de la contribution en autre type de particules, le coefficient d'Angström pourra être quand même faible.

La Figure 5-9 et la Figure 5-10 présentent le coefficient d'Angström et l'épaisseur optique mesurés sur le site au niveau de confiance 1.5 (sans couverture nuageuse mais la qualité des données n'est pas assurée). Cependant, l'étude de la nature des particules transitant au dessus de la mer durant cette campagne de mesures, nécessite en plus de l'extinction particulaire, les conditions météo-océanographiques.

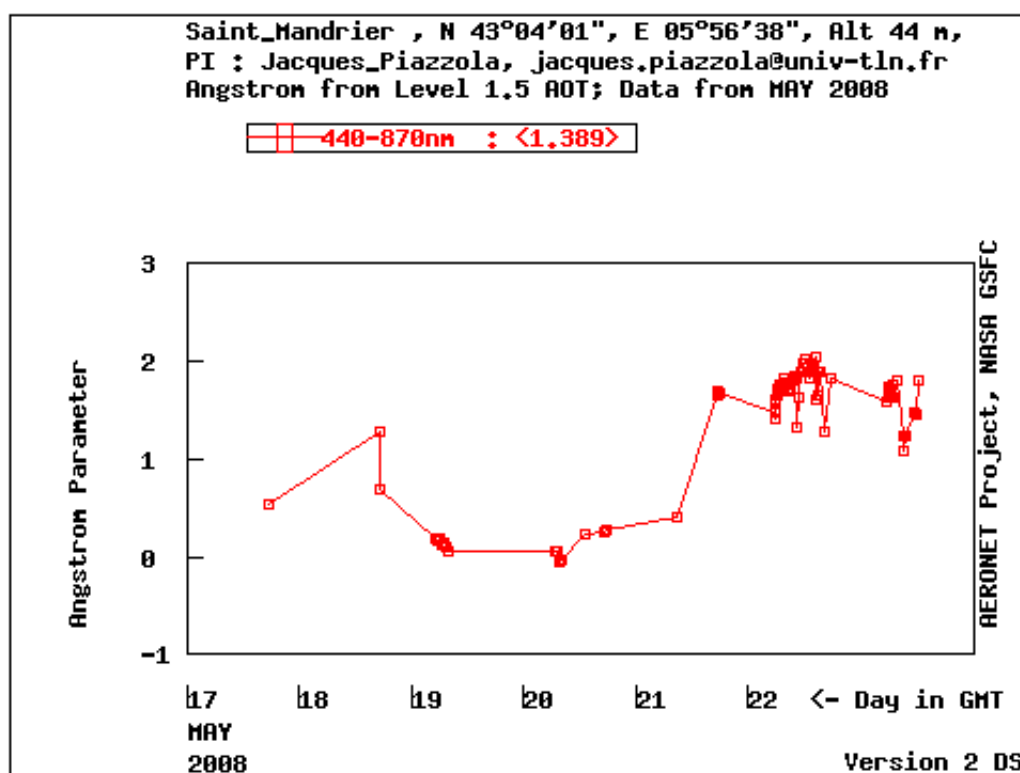


Figure 5-9 : Coefficient d'Angström mesuré sur le site du SESDA à St Mandrier (AERONET, level 1.5)



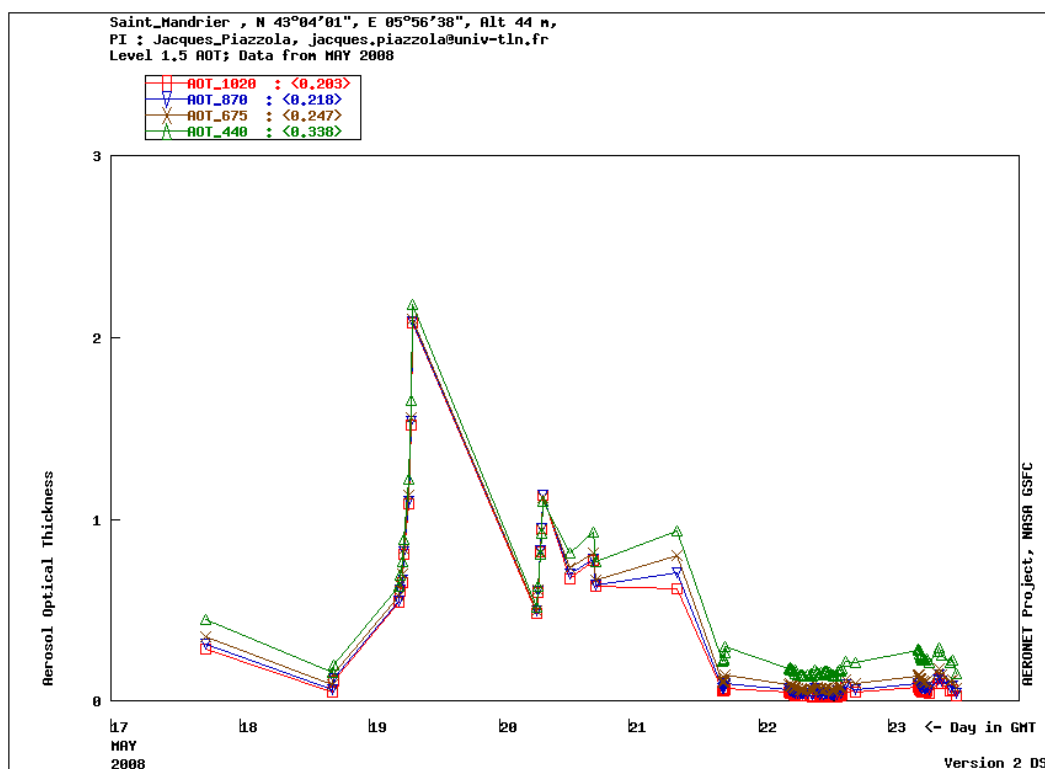


Figure 5-10 : Epaisseur optique mesurée sur le site du SESDA à St Mandrier (AERONET, level 1.5)

#### 5.2.4 Etat de mer

La Figure 5-11 présente l'évolution temporelle de certains paramètres mesurés par le houlographe de PREVIMER : la hauteur significative, la fréquence pic et la longueur d'onde des vagues. La variabilité de ces paramètres nous permettra par la suite d'estimer leur influence sur la production en particules d'aérosols.

L'état de mer est couramment décrit par l'échelle de Douglas (Tableau 5-2). Durant la période de mesures, l'état de mer oscillait entre « peu agitée » et « forte ».

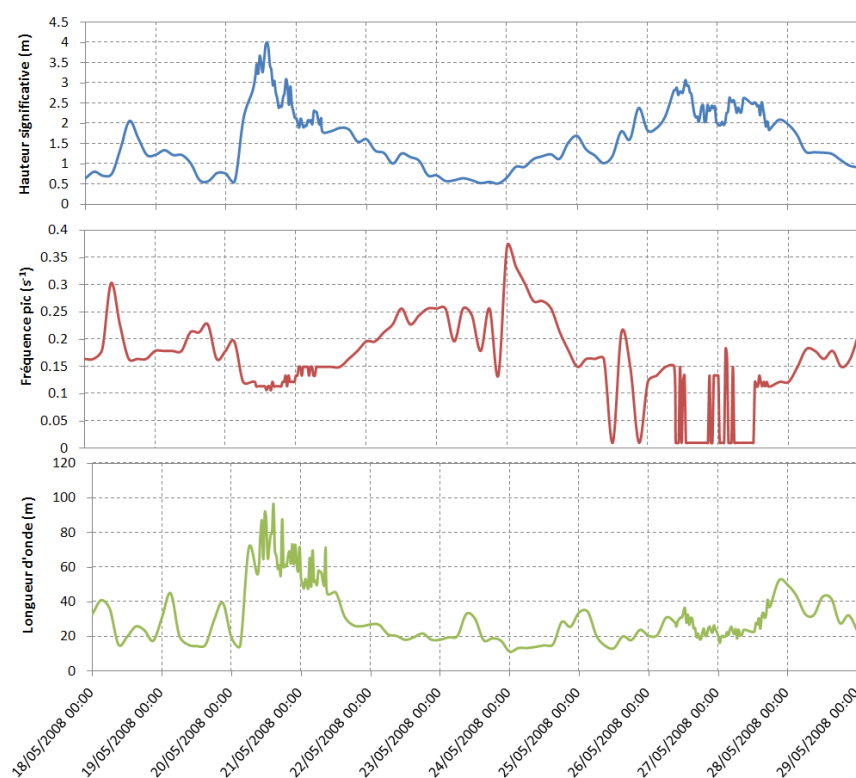


Figure 5-11 : Hauteur significative (trait plein bleu), fréquence pic (trait plein rouge) et longueur d'onde (trait plein vert) des vagues, houllographe PREVIMER

Force	Descriptif	Hauteur (m)
0	calme	0
1	ridée	0 à 0,1
2	belle	0,1 à 0,5
3	peu agitée	0,5 à 1,25
4	agitée	1,25 à 2,5
5	forte	2,5 à 4
6	très forte	4 à 6
7	grosse	6 à 9
8	très grosse	9 à 14
9	énorme	14 et plus

Tableau 5-2 : Echelle de Douglas

### 5.2.5 Suivi journalier

Le 18 mai, à partir de 4h du matin, le vent tourne en direction ouest (voir Figure 5-5). Vers 9h, il se renforce considérablement pour atteindre des vitesses de l'ordre de 14 m/s en fin d'après-midi dans une direction ouest voire ouest-sud-ouest. Les masses d'air sont originaire de l'Atlantique, traversent l'Espagne avant de venir par l'ouest du Golfe du Lion (Figure 5-7). La mer est relativement agitée, des hauteurs significatives de vagues de l'ordre de 2 mètres sont enregistrées (voir Figure 5-11). En début de journée, le coefficient d'Angström est élevé ( $\alpha > 1.5$ , voir Figure 5-9), les aérosols majoritairement de petite taille sont probablement de nature anthropique et terrigène. A partir du milieu de matinée, le coefficient d'Angström diminue et l'AOD ne dépasse pas la valeur 0.5. Les aérosols sont de nature essentiellement marine avec une composante continentale légère (probablement largement anthropique) observable uniquement sur les petites tailles ( $< 0.2 \mu\text{m}$ ).

Dans la nuit du 18 au 19, le vent se calme en deçà de  $2 \text{ m.s}^{-1}$ . A partir de 3 heures du matin, il s'oriente direction est. Dans la matinée, le vent forcit pour varier entre 7 et  $8 \text{ m.s}^{-1}$ . Vers 15 heures, il baisse fortement et tourne progressivement jusqu'à atteindre une direction ouest vers 22h. Au cours de la journée, l'épaisseur optique augmente régulièrement de 0.5 et dépasse

rapidement l'unité avec un faible coefficient d'Angstrom ( $< 0.1$ ). Cependant on ne peut interpréter ces résultats avec confiance vue l'épaisse couverture nuageuse.

Le vent passe en direction ouest dans la nuit du 19 au 20 mai pour rester faible à modéré au cours de la journée. L'épaisseur optique (AOD) toujours proche de 1 et coefficient d'Angström très petit ( $< 0.2$ ). Même cas de figure que le jour précédent.

Dans la matinée du 21, le vent tourne jusqu'à se stabiliser dans une direction ouest-nord-ouest où il forçait considérablement. Il provient de la vallée du Rhône et débouche dans le golfe du Lion avec un rayon de courbure impliquant un vent de direction ouest dans la baie de Toulon. La longueur de mer au dessus de laquelle il souffle est suffisante pour entraîner une importante production d'aérosols marins. De plus, la mer est agitée, les vagues atteignent 2 m de hauteur. On observe également une influence continentale et anthropique sur les petites tailles notamment donc plus visible, l'AOD étant de 0.2 et le coefficient d'Angström de 1.7.

Dans la nuit du 21 au 22, le vent diminue jusqu'à osciller dans la matinée entre 5 et 7  $\text{m.s}^{-1}$ . La hauteur des vagues diminue, la mer devient peu agitée. L'épaisseur optique est inférieure à 0.2 et le coefficient d'Angström est relativement élevé ( $> 2$ ). Les particules sont d'origine marine avec une contribution anthropique et terrigène notamment dans les petites dimensions. Le vent fort de la journée précédente a nettoyé l'atmosphère par dispersion. L'accalmie du 22 est à l'origine d'une recharge de l'atmosphère en particules anthropiques et terrigènes, caractérisé par une augmentation du coefficient d'Angstrom à la mi-journée.

Dans la nuit du 22 au 23, le vent change de direction pour s'aligner sur le secteur nord-est avec une vitesse faible. La mer reste peu agitée. L'AOD de l'ordre de 0.2-0.3 et le coefficient d'Angström égal à 1.7, sont témoins d'une probable période de recharge en aérosols anthropiques et terrigènes.

A partir du 24 mai, les données du photomètre sont peu exploitables. Le vent de secteur nord est forçait et dépasse 10  $\text{m.s}^{-1}$ . Il est probable que les poussières anthropiques soient encore bien présentes dans la couche limite atmosphérique marine. La hauteur des vagues augmente, jusqu'à dépasser 2.5 m le 26. Les rétrotrajectoires témoignent de masses d'air en provenance d'Afrique du nord. La contribution saharienne n'est donc pas négligeable. De plus, la forte agitation de la mer et le vent fort laissent supposer une forte contribution marine dans les échantillons d'aérosols du 24 au 26.

Le 27 mai, les masses d'air survolent la Méditerranée au large de l'Italie. On peut supposer une composante essentiellement marine au vu de la mer très agitée ainsi que des fortes vitesses de vent. Les masses d'air survolant le Golfe de Gênes, on peut également supposer une contribution anthropique et terrigène.

## 5.3 Distributions en taille des particules

### 5.3.1 Etude des distributions mesurées

Les particules mesurées aux stations 2, 3, 10 et 11 du bateau (Tableau 5-1) sont essentiellement d'origine marine. Les conditions de mesures correspondent à des fetches infinis et des vents de 11.8, 10.3, 9.8 et 4.6 m.s<sup>-1</sup>, respectivement. Des mesures ont été effectuées simultanément sur la station de Porquerolles pour les stations 10 et 11. Le vent sur l'île était alors de 11.3 et 4.1 m.s<sup>-1</sup>, respectivement.

La Figure 5-12 de (a) à (d) présente les distributions granulométriques mesurées sur le bateau et l'île ainsi que les distributions estimées par le modèle MEDEX pour les quatre conditions de vent. Nous constatons que les concentrations sont similaires pour les particules submicroniques mesurées sur l'île, le navire et le modèle. Pour les particules supermicroniques, les concentrations sont environ 10 fois supérieures sur Porquerolles par rapport au navire et MEDEX, pour les conditions de vent faible et de vent moyen. Cependant, les rayons modaux des particules supermicroniques sont du même ordre de grandeur entre le navire et Porquerolles, on l'évalue à environ 3 µm alors que pour MEDEX, il est de l'ordre de 10 µm.

Lewis & Schwartz (2004) ont comparés les distributions en taille mesurées entre 1951 et 2001 en différents lieux (Atlantique, Méditerranée, Océan Indien, mer du nord) pour différentes classes de vent et à une hauteur de 10 m. Entre 5 et 7 m.s<sup>-1</sup>, les concentrations en particules de 1 µm sont comprises entre 0.3 et 10 part.cm<sup>-3</sup>.µm<sup>-1</sup>. Sur Porquerolles, nous observons une concentration de l'ordre de 6 part.cm<sup>-3</sup> et sur le navire, elle est d'environ 0.6 part.cm<sup>-3</sup>.µm<sup>-1</sup> (voir Figure 5-12d). Prodi et al. (1983) ont mesuré une concentration intermédiaire, soit environ 3 part.cm<sup>-3</sup>.µm<sup>-1</sup>. Durant la campagne de mesures Porquerolles 2000, les concentrations mesurées pour cette classe de vent était de l'ordre de 0.3 part.cm<sup>-3</sup>.µm<sup>-1</sup>. Pour la classe de vent 8-11 m.s<sup>-1</sup>, les différentes mesures récapitulées par Lewis et Schwartz varient entre 1 et 20 part.cm<sup>-3</sup>.µm<sup>-1</sup>. En Méditerranée, Fournier D'Albe (1951) l'estime à 2 part.cm<sup>-3</sup>.µm<sup>-1</sup> alors que sur Porquerolles nous mesurons 15 part.cm<sup>-3</sup>.µm<sup>-1</sup> et 1.55 part.cm<sup>-3</sup>.µm<sup>-1</sup> sur le navire (voir Figure 5-12c). La concentration en particules sur Porquerolles est encore environ 10 fois plus importante que celle mesurée sur le bateau.

La concentration mesurée sur le navire est relativement proche de celle mesurée par Fournier D'Albe (1951). La concentration mesurée sur Porquerolles est environ 10 fois plus élevée que sur le navire et Prodi et al. (1983) mesurent des concentrations intermédiaires. Les conditions de mesures différentes d'une station à l'autre (fetch, effets bathymétriques, trait de côte et appareils de mesures) sont à l'origine de ces différences de concentrations en particules.

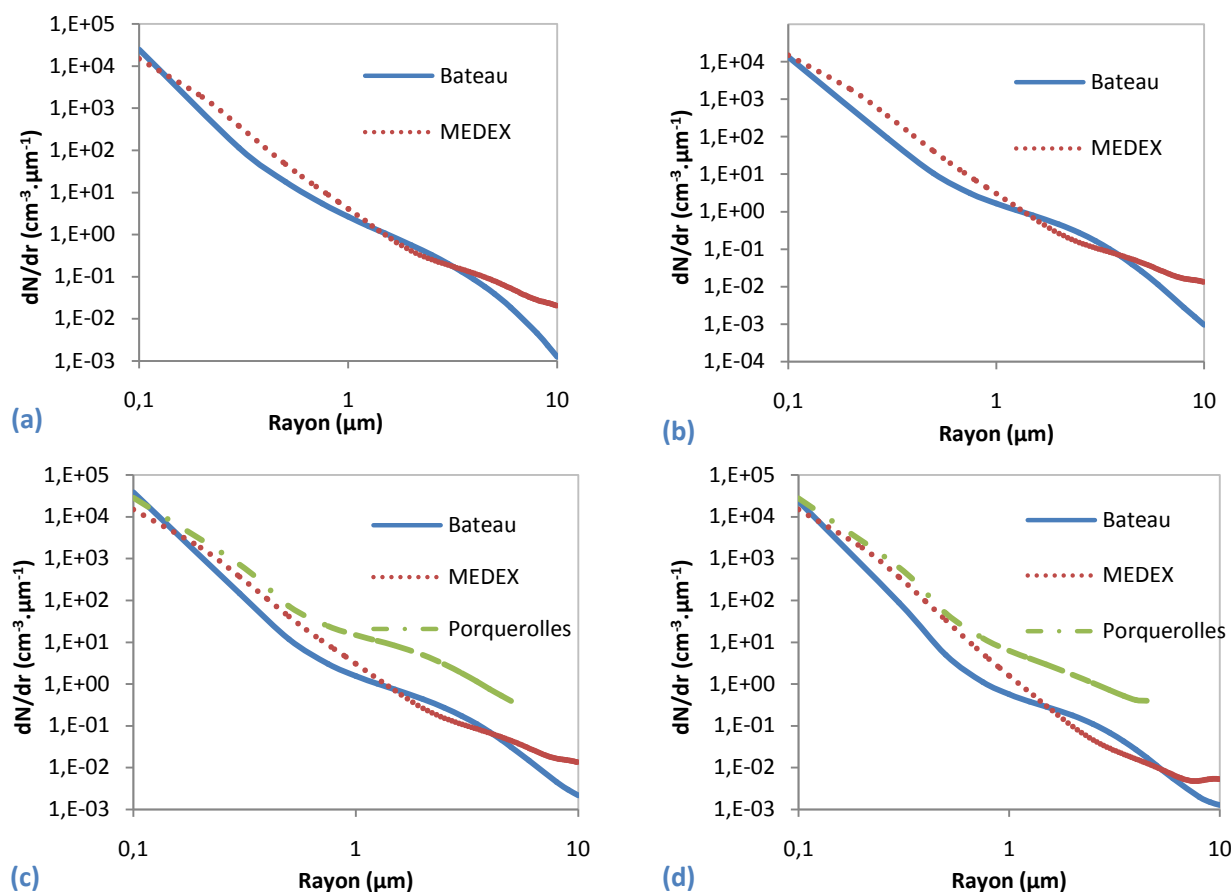


Figure 5-12 : Distributions granulométriques des stations 2 (a), 3 (b), 10 (c) et 11 (d) du bateau, de Porquerolles (c et d) et du modèle MEDEX.

### 5.3.2 Estimation de la différence de concentration mesurée entre Porquerolles et le bateau-Contribution du trait de côte

La campagne de mesures a permis de mettre en évidence l'importance du trait de côte sur la production en particules marines. Huit séries de données ont été mesurées simultanément sur l'île de Porquerolles et sur le bateau. Les appareils de mesures ont été calibrés de manière identique sur le navire et sur l'île ce qui réduit l'apparition d'erreurs de mesures. Suivant la taille des particules, les distributions granulométriques sont très différentes. La Figure 5-13 présente le rapport de concentration entre les mesures de Porquerolles et celles du bateau en fonction de leur diamètre. Ce rapport est de l'ordre de 1 pour les particules de  $0.2 \mu\text{m}$  puis est compris entre 5 et 25 pour les grosses particules. La valeur du rapport semble aussi dépendre de la station, et par conséquent, des conditions météorologiques et océanographiques et de la position géographique du bateau. En effet, les concentrations sont identiques pour les particules de  $0.2 \mu\text{m}$ . Or, les particules de cette gamme de taille, typiquement d'origine anthropique et continentale, résident dans l'atmosphère plusieurs jours et sont transportés sur plusieurs dizaines, voire centaines, de

kilomètres. Par contre, dans la gamme de taille de particules typiquement d'origine marine ( $0.5 \mu\text{m}$ ), les différences de concentration sont grandes.

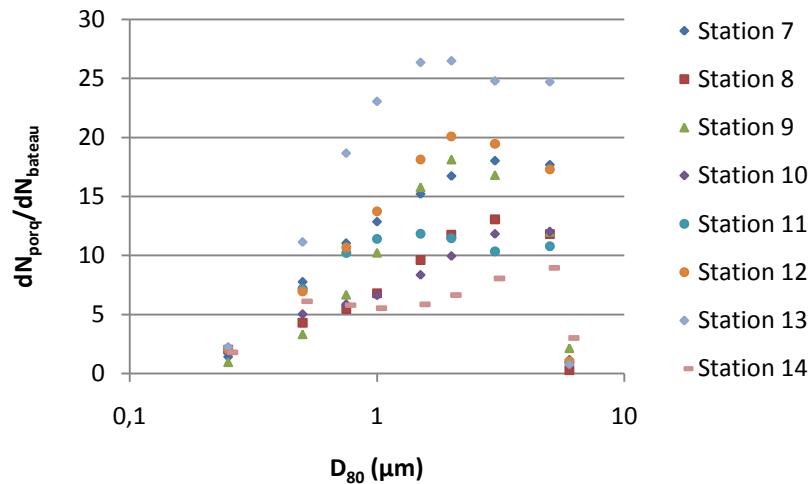


Figure 5-13 : Rapport de concentration entre les mesures de Porquerolles et celles du bateau en fonction du diamètre des particules.

De la Figure 5-14 à la Figure 5-15 sont représentées la vitesse du vent, sa direction et le fetch au niveau du navire et de la station de Porquerolles. Les positions des différentes stations sont indiquées sur la Figure 5-17. Les valeurs du vent et du fetch peuvent être différentes entre celles obtenues sur le bateau et celles obtenues à Porquerolles. Ces différences varient selon la position du bateau.

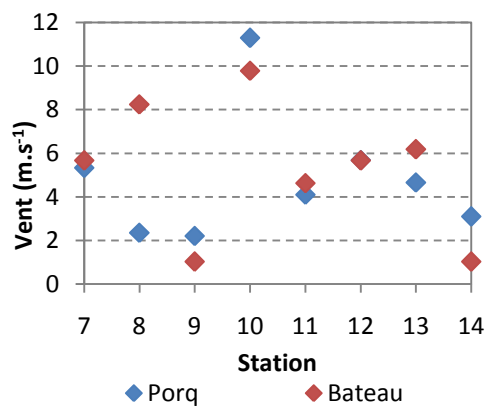


Figure 5-14 : Vents mesurés à Porquerolles et sur le bateau

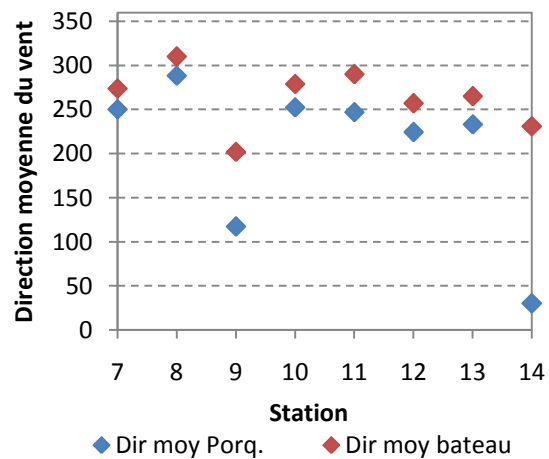


Figure 5-15 : Direction moyenne du vent mesuré à Porquerolles et sur le bateau

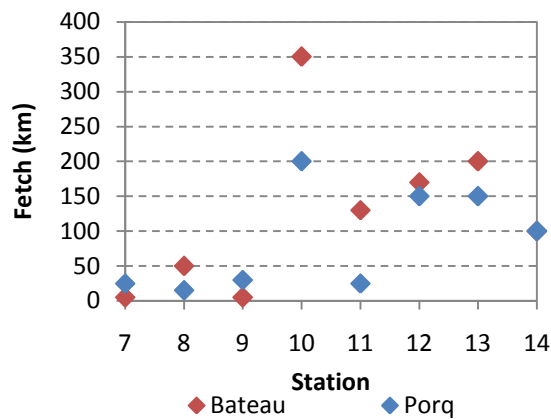


Figure 5-16 Longueur de fetch à Porquerolles et sur le bateau



Figure 5-17 : Position des différentes stations du bateau et de Porquerolles

Les hauteurs significatives des vagues mesurées (PREVIMER et MIRAMER) sont dessinées sur la Figure 5-18.

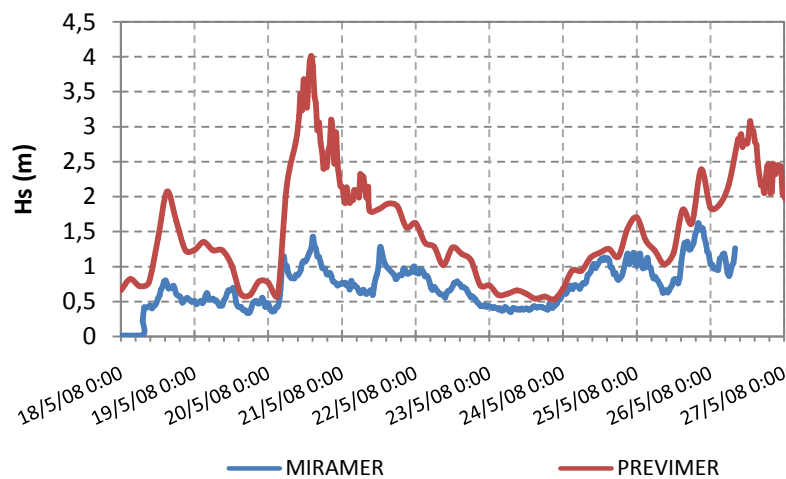


Figure 5-18 : Hauteur significative des vagues au large de Porquerolles (PREVIMER) et à l'est du cap Sicie (MIRAMER)

Le rapport des concentrations (Figure 5-13) est minimal pour la station 14 du bateau située en pleine mer. Ces mesures ont été effectuées dans des conditions de vent très faibles et orientés ouest (direction non déterminée sur l'île car trop faible). Le vent ayant soufflé pendant plusieurs jours auparavant dans la direction ouest, il est possible que l'orientation du champ de vagues n'ait pas été modifiée malgré l'accalmie. Les concentrations mesurées sont témoins d'une production résiduelle.

Le rapport entre les mesures effectuées à Porquerolles et le navire est maximal pour la station 13 où il atteint 25 pour les particules supermicroniques. Pourtant comme pour la station 14, le navire est en pleine mer mais le fetch est entre 1.5 et 2 fois plus long et le vent est moyen-faible.

Les mesures de la station 9 se sont déroulées durant une période d'accalmie. Cependant, le fetch est très court et le bateau est à l'abri du cap Sicié. Sur Porquerolles, les concentrations sont jusqu'à 18 fois plus importantes. Si l'on compare les hauteurs significatives des vagues (Figure 5-18, le 21 à 9h40), on constate qu'à proximité du navire les vagues font 0.5 mètres et près de 1.8 mètres à Porquerolles. Le taux de déferlement, à l'origine de la production indirecte d'aérosols marins, est plus élevé à proximité de l'île.

De même, de part sa position géographique, le navire est abrité par le cap Sicié pour la station 7. Le vent est moyen, voire faible et orienté ouest. La hauteur des vagues à proximité de Porquerolles est de 4 mètres alors qu'à proximité du navire elles mesurent environ 1 mètre (Figure 5-18). Le taux de déferlement, probablement plus important sur l'île, expliquerait ce surplus de concentrations.

Pour la station 8, la situation est inversée. Le rapport de concentration est relativement élevé comparé à la situation. En effet, le vent est faible sur l'île alors qu'il souffle à  $8 \text{ m.s}^{-1}$  sur le navire et sur un fetch de 50 km qui est 2 à 3 fois plus long que celui de l'île. Les vagues mesurées à proximité de l'île atteignent 2.5 m. Le vent et le fetch étant plus grands sur le navire, la concentration sur Porquerolles devrait donc être inférieure à celle mesurée sur le navire.

Les mesures de la station 11 se sont déroulées lors d'un vent orienté ouest d'environ  $4.5 \text{ m.s}^{-1}$ . Le rapport de concentration est inférieur à 12. Le fetch est de quelques dizaines de kilomètres sur l'île et d'une centaine de kilomètres sur le bateau situé également en pleine mer. Malgré le vent faible les vagues sont de l'ordre de 1.5 m de haut à proximité de Porquerolles avec de la production marine.

Les conditions de vent et de fetches sont très similaires sur l'île et le bateau pour la station 12. Le fetch est d'environ 150-180 km, le vent, orienté ouest, a une intensité de  $5 \text{ m.s}^{-1}$ . Le bateau est en pleine mer. Le rapport entre les concentrations mesurées sur l'île et le bateau atteint pourtant 20 pour des particules de  $2 \mu\text{m}$ .

Quant à la station 10, les mesures ont été acquises durant le vent le plus fort, de l'ordre de  $10 \text{ m.s}^{-1}$ . Le rapport est inférieur à 12. Le fetch est long, 200 km sur l'île et 350 km sur le bateau qui est situé à une centaine de kilomètres au sud de l'île.

Sur la Figure 5-19 on observe une bathymétrie inférieure à 50 m (en turquoise) le long de la côte ouest de l'île de Porquerolles sur environ 1.5 km et inférieure à 20 m sur quelques centaines de mètres. Sur la Figure 5-11, on constate que la longueur d'onde du champ de vague est de l'ordre d'une vingtaine de mètres pour les stations, excepté du 20 au 21 mai (correspondant aux stations 7, 8, 9 et 10 du navire) où elle varie entre 60 et 100 m. Le déferlement bathymétrique a lieu lorsque la profondeur est inférieure à la demi longueur d'onde. Le déferlement en amont de la station de Porquerolles est dû à la bathymétrie et apparaît sur quelques centaines de mètres, excepté du 20 au 21 mai où il peut atteindre 1.5 km. Cependant, on ne peut considérer cette zone de déferlement comme une zone de surf puisqu'elle n'est pas continuellement couverte de mouton. Seules pour les stations 7 et 9 du navire, qui sont à proximité des côtes où la profondeur



est inférieure à 50 m et qui possèdent respectivement les mêmes conditions de vents et fetches que la station de Porquerolles, apparaît du déferlement bathymétrique. Ce dernier est moins conséquent près du navire puisque les vagues sont moins cambrées (0.01 à la station 7 contre 0.05 près de l'île et 0.02 à la station 9 contre 0.04). Or, les différences de concentration entre l'île et le navire sont tout de même relativement élevées pour ces deux stations quelque soit la position du bateau et les conditions météorologiques et océanographiques. Il est donc probable que le déferlement bathymétrique ne soit pas la seule cause du surplus de concentration sur l'île.

De plus, on peut noter que la position de la station ainsi que le vent, le fetch et la hauteur des vagues accentuent les différences de concentration observées sur l'île et le bateau. La station de Porquerolles se situe sur une falaise bordée de rochers à ses pieds (Figure 5-20). Les vagues s'écrasent sur ces rochers (trait de côte) couvrant la surface marine de moutons et créant de nombreuses éclaboussures (splash drops), ainsi de nouvelles particules marines sont générées.

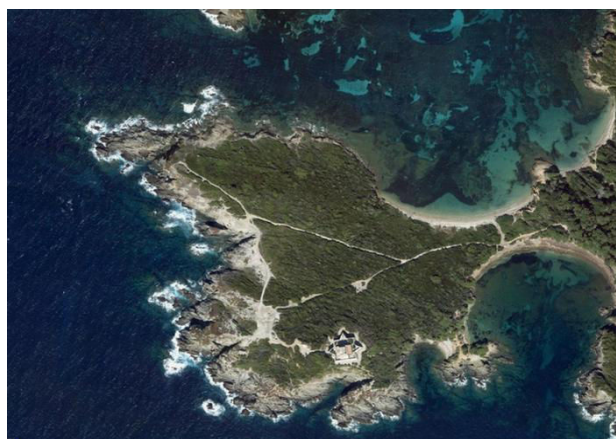


Figure 5-19 : Déferlement parasite sur le trait de côte autour de la station de Porquerolles (Google Earth)

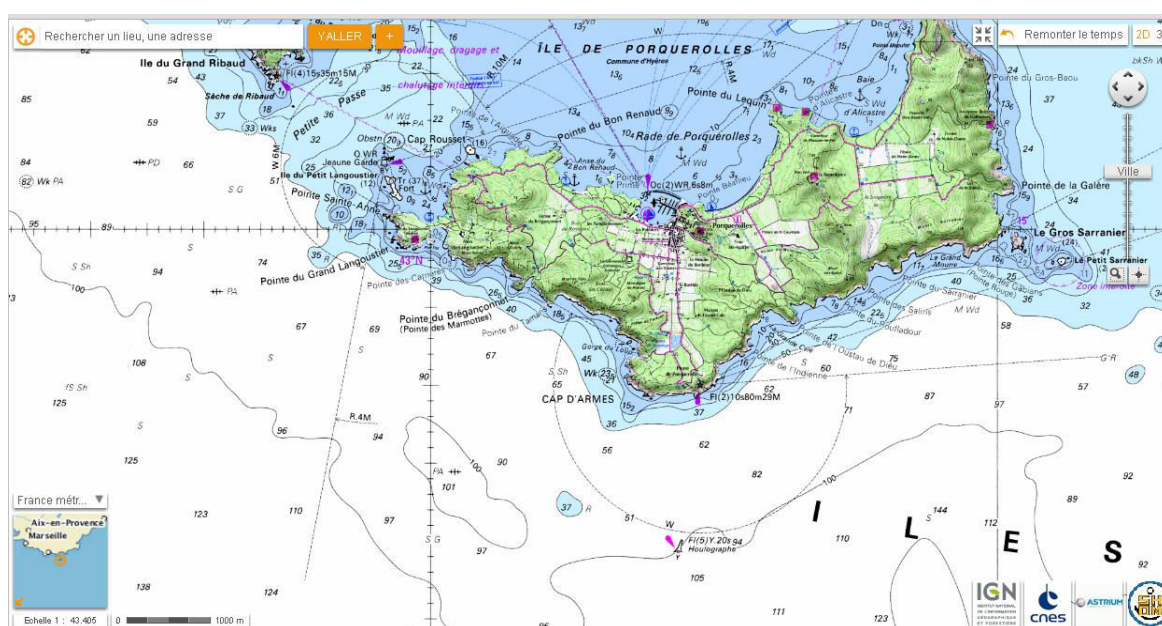


Figure 5-20 : Bathymétrie autour de la station de Porquerolles (carte IGN, géoportail), profondeur supérieure à 50 m en blanc, profondeur entre 20 et 50 m en turquoise et profondeur inférieure à 20 m en bleu.

La surproduction observée à Porquerolles serait due à la combinaison de trois processus. D'une part, la variation de la bathymétrie autour de l'île serait à l'origine de déferlement et donc de production marine plus ou moins importante suivant les caractéristiques du champ de vagues. D'autre part, l'absence de zone de surf à la station de Porquerolles nous a permis de mettre en évidence l'importance du **trait de côte** sur la production. Finalement, d'autres phénomènes peuvent participer à ce surplus de concentration. Près des côtes, l'apport fluvial de nutriments favorise le boom planctonique. Lors de la photosynthèse du phytoplancton, des bulles d'air sont créées, remontent à la surface puis éclatent, créant des particules d'aérosols. Cependant, ces phénomènes sont mineurs devant l'importance du trait de côte et de la bathymétrie.

## 5.4 Caractérisation Physique des aérosols marins

La station de Porquerolles a fourni des mesures en continu de la concentration en particules du 20 au 23 mai 2008. Ces données permettent de mettre en évidence les différents paramètres jouant un rôle sur la production et le transport de particules.

### 5.4.1 Concentration en fonction du temps

La concentration en particules d'aérosol pour  $r=1\ \mu\text{m}$  mesurée à Porquerolles est tracée en fonction du temps sur la Figure 5-21. On constate que la concentration a tendance à suivre les variations du vent. Cependant, on remarque quelques phénomènes particuliers.

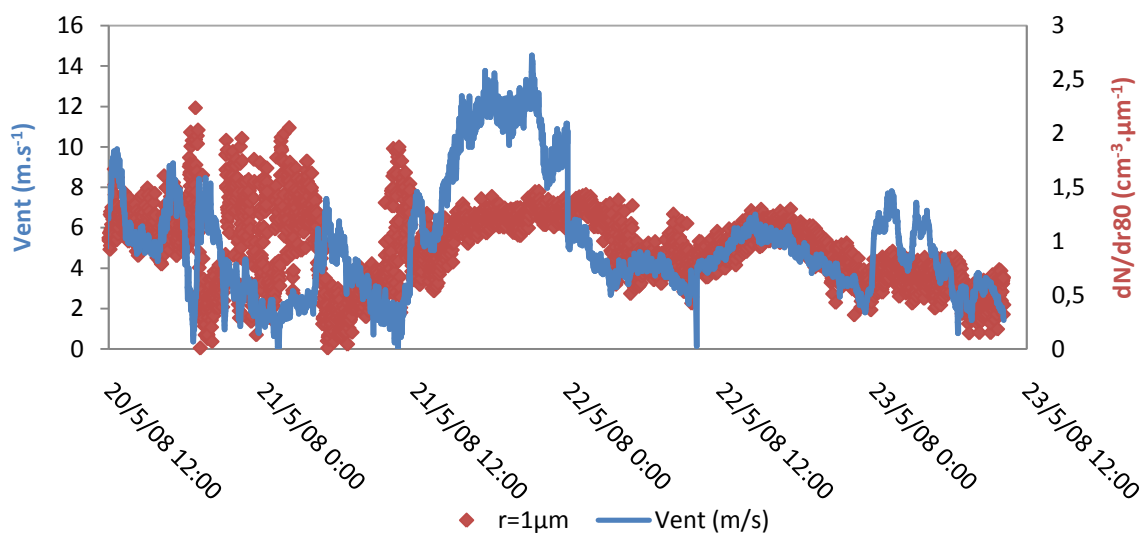


Figure 5-21 : Concentration des particules de  $1\ \mu\text{m}$  et vent mesurés sur Porquerolles

Dans la nuit du 20 au 21, la concentration en particules est très dispersée. Après des précipitations relativement faibles au cours de la nuit, la concentration en particules est au minimum, il y a lessivage « partiel » de l'atmosphère.

On observe un pic de particules le 21 à midi, lorsque le vent tourne de l'est vers l'ouest en passant par le sud et devient très faible. Ce pic est probablement dû à la chute des particules d'altitudes plus élevées.

On constate que la concentration en particules suit les variations du vent, notamment lorsque ce dernier augmente. Cependant, lorsque le vent décroît, la concentration diminue mais avec un temps de retard. Ceci est dû au fait que les particules mettent du temps à être éliminées, ce qui peut être plus ou moins long selon leur taille. On parle de temps de décroissance des concentrations en particules.

#### a. Temps de décroissance des concentrations

Les particules en suspension dans l'atmosphère tendent à se déposer au bout d'un certain temps. Pour une atmosphère de faible turbulence, Smith et al. (1991) proposent la relation suivante :

$$\frac{N}{N_0} = \exp\left[\frac{-V_D t}{h}\right] \quad (5-1)$$

où  $h$  est la hauteur de la couche limite,  $t$  le temps de décroissance des concentrations,  $V_D$  la vitesse de dépôt,  $N$  et  $N_0$  les concentrations au cours du temps et au temps initial.

Les mesures effectuées sur Porquerolles ont été prises sur une période assez longue et répondent à la condition de la relation (5-1). Le vent souffle à une vitesse de  $4 \text{ m.s}^{-1}$  et l'épaisseur de couche limite est de 1 km. La vitesse de dépôt est déterminée à partir de la formule de Carruthers & Choularton (1986) (cf. Eq.(1-4)). Les temps de décroissance des concentrations en particules, calculées pour plusieurs rayons à partir de la relation (5-1), sont regroupés dans le Tableau 5-3.

Rayon ( $\mu\text{m}$ )	Durée de vie
0.5	1 semaine
2.5	1 jour
5	5h
7.5	3h

Tableau 5-3 : Durée de vie des particules dans l'atmosphère

### 5.4.2 Concentration en fonction des régimes de vent

Les mesures de concentration sur l'île de Porquerolles ont été effectuées principalement pour des vents orientés S-O et N-E. D'autres directions ont été prises en compte mais correspondent aux changements d'orientation et sont donc peu représentatives.

La Figure 5-22 présente les concentrations moyennes en fonction des classes de vitesse des vents de secteur N-E, de secteur S-O et des directions intermédiaires correspondant au cas où le vent tourne, pour des particules de  $0.5\ \mu\text{m}$  (a) et  $5\ \mu\text{m}$  (b). Lorsque le vent est inférieur à  $4\ \text{m.s}^{-1}$ , la production marine est très faible ; voire inexistante, ce qui est représentatif du bruit de fond.

La concentration en particules de  $0.5\ \mu\text{m}$  est nettement plus élevée dans le cas de vents de secteur S-O que dans le cas de vents de secteur N-E. Par contre, pour les particules de  $5\ \mu\text{m}$ , les concentrations moyennes sont similaires. D'un part, les vents de secteurs S-O correspondent à des fetches de plusieurs centaines de kilomètres le long desquels les masses d'air se chargent en particules marines alors que les vents orientés N-E, le vent parcourt seulement quelques kilomètres de mer. D'autre part, les petites particules sont transportées sur de longues distances. D'où, la concentration plus importante par vent d'ouest pour les petites particules.

On remarque également que lors d'un vent S-O, la concentration en particules augmente avec la vitesse du vent. Ce phénomène sera étudié dans la section 5.4.3.

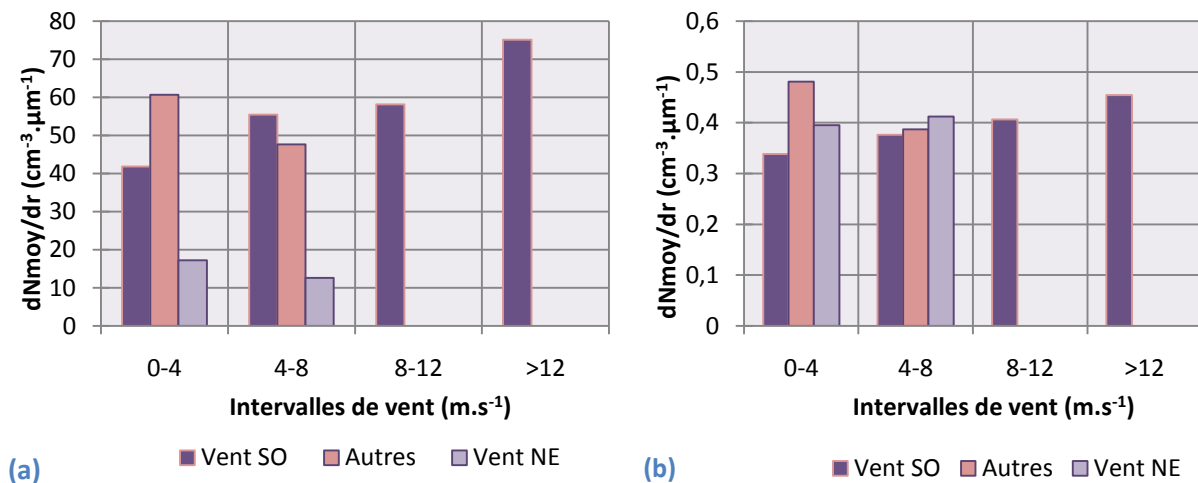


Figure 5-22 : Concentration moyenne de particules de rayon  $0.5\ \mu\text{m}$  (a) et  $5\ \mu\text{m}$  (b) en fonction de différentes classes de vitesse de vent (Porquerolles)

### 5.4.3 Concentrations mesurées en fonction de la vitesse du vent

La vitesse du vent est un paramètre important dans le transport et la production de particules marines. Il est à l'origine des vagues, intervient dans leur déferlement et donc la production de particules par éclatement des bulles. De plus, il est à l'origine de la formation de grosses particules par écrêtage des vagues.

### a. Fetch limité :

En fetch limité, c'est-à-dire lorsque le vent (ici de secteur N-E) souffle au dessus de la mer sur distance limitée, la vitesse du vent semble avoir peu d'influence sur la concentration en particules (voir Figure 5-23). Notons que durant les mesures de concentration à Porquerolles, le vent n'a pas soufflé dans la direction N-E de façon uniforme en direction (voir Figure 5-5). Ces résultats sont donc à prendre avec précaution.

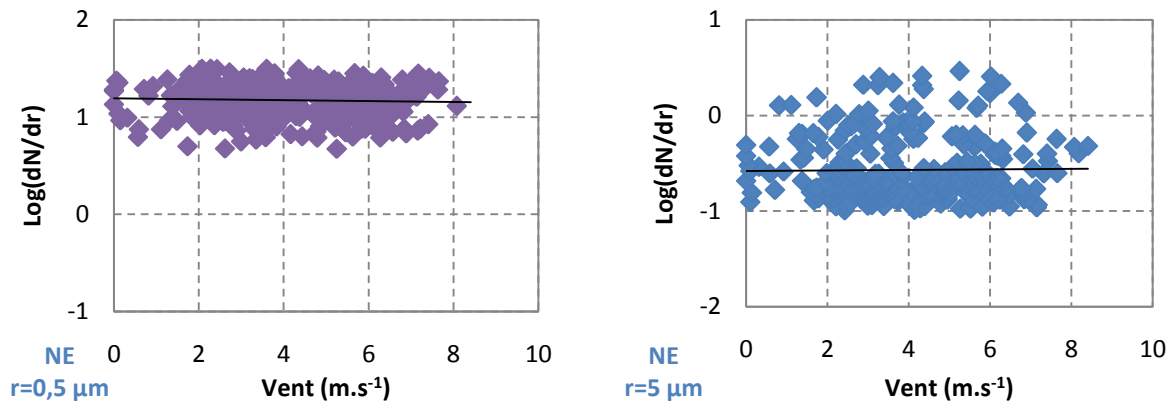


Figure 5-23 : Concentration en particules (en log) en fonction de la vitesse du vent en fetch limité pour des particules de 0.5 μm (a) et 5 μm (b) (Porquerolles)

### b. Fetch long ou infini :

Lorsque le fetch est long, c'est-à-dire lorsque le vent souffle au dessus de la mer sur plusieurs centaines de kilomètres (ici vent de secteur S-O) la concentration en particules augmente lorsque la vitesse du vent augmente (voir Figure 5-24). La relation entre la concentration et la vitesse du vent est de la forme,  $\text{Log}(dN/dr) = aU + b$ . On constate que suivant la taille des particules, la pente de la droite varie.

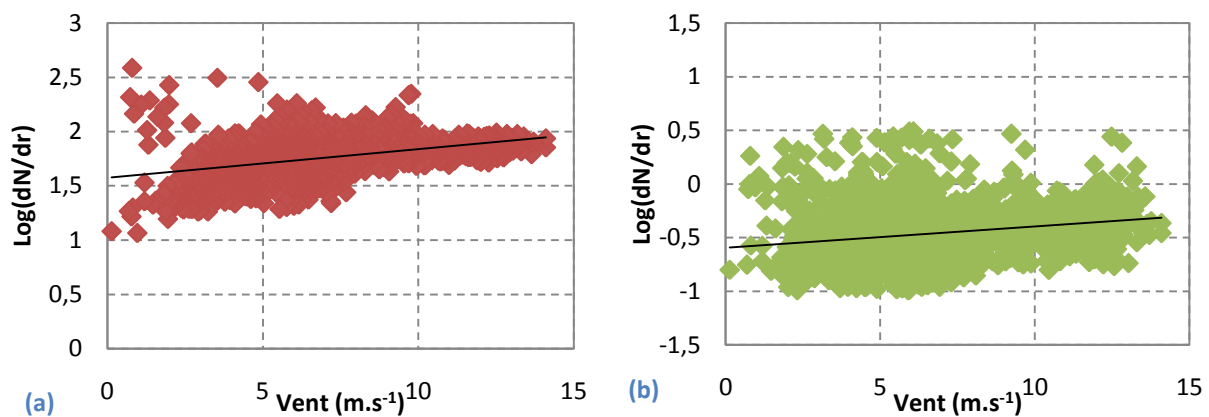


Figure 5-24 : Concentration en particules (en log) en fonction de la vitesse du vent en fetch infini pour des particules de 0.5 μm (a) et 5 μm (b) (Porquerolles)

La Figure 5-25a présente la pente  $a$  et la Figure 5-25b présente l'ordonnée à l'origine ( $b$ ), calculées en fonction de la taille des particules. La pente  $a$  traduit l'efficacité de la production sous l'effet

du vent qui est particulièrement efficace pour les particules de quelques microns (pic à  $2.5 \mu\text{m}$ ). Cette gamme de taille, typique des aérosols marins, correspond aux particules issues de l'éclatement des bulles lors du déferlement des vagues (Smith et al. 1993; Guelle et al. 2001). L'ordonnée à l'origine  $b$  donne une information sur le bruit de fond, c'est-à-dire les particules en suspension dans l'atmosphère présentes en l'absence de vent. Ce dernier est plus faible pour les grosses particules qui s'éliminent plus rapidement que les petites.

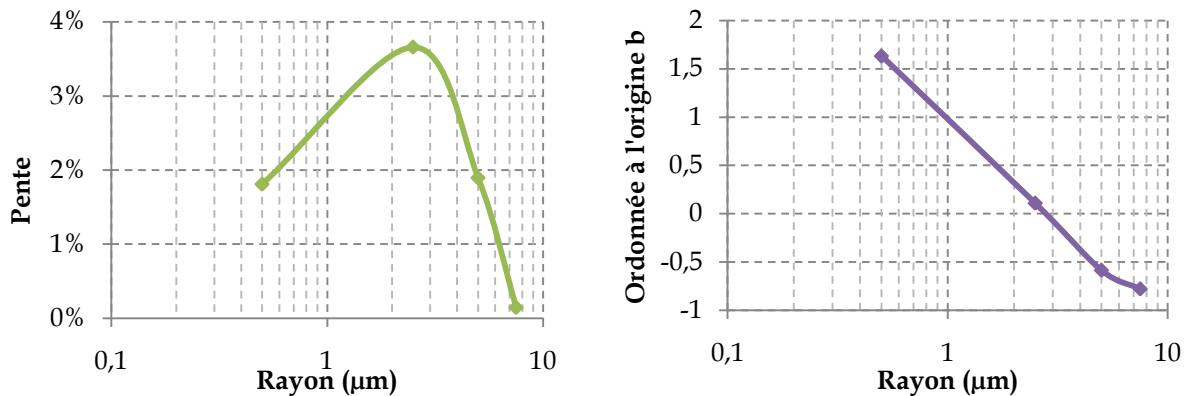


Figure 5-25 : Pente (a) et Ordonnée à l'origine (b) des régressions linéaires de la concentration en particules en fonction de la vitesse du vent

#### 5.4.4 Concentrations mesurées en fonction du champ de vagues

Le champ de vagues mesuré par le houlographe, mouillé au sud de Porquerolles, est semblable à celui arrivant sur la station de Porquerolles lorsque le vent est orienté SO. Par vent orienté NE, l'île fait écran à la bouée, ainsi nous ne pourrions avoir de données représentatives du champ de vagues à la station. Nous étudierons alors uniquement l'influence du champ de vague lors d'un vent orienté SO. Une trentaine de mesures de concentration est concomitante aux mesures de la bouée.

Le déferlement des vagues apparaît lorsque le sommet de la crête devient instable. Cette instabilité se caractérise généralement par une cambrure élevée de la vague définie comme le rapport entre la hauteur significative et la longueur d'onde des vagues. Selon l'état de développement des vagues, le déferlement peut donc être plus ou moins important. De ce fait, on peut supposer que des relations mathématiques existent entre la concentration en particules et les différents paramètres définissant le champ de vague comme la hauteur significative, la longueur d'onde, le nombre de vagues.

##### a. Hauteur significative des vagues

Sur la Figure 5-26 est représentée la concentration en particules en fonction de la hauteur significative des vagues pour des particules de  $0.5 \mu\text{m}$  (a) et  $5 \mu\text{m}$  (b). On constate que la

concentration a tendance à augmenter lorsque les vagues grandissent et notamment pour les petites particules. Cependant pour les grosses particules, la corrélation entre la concentration et la hauteur des vagues est moins évidente.

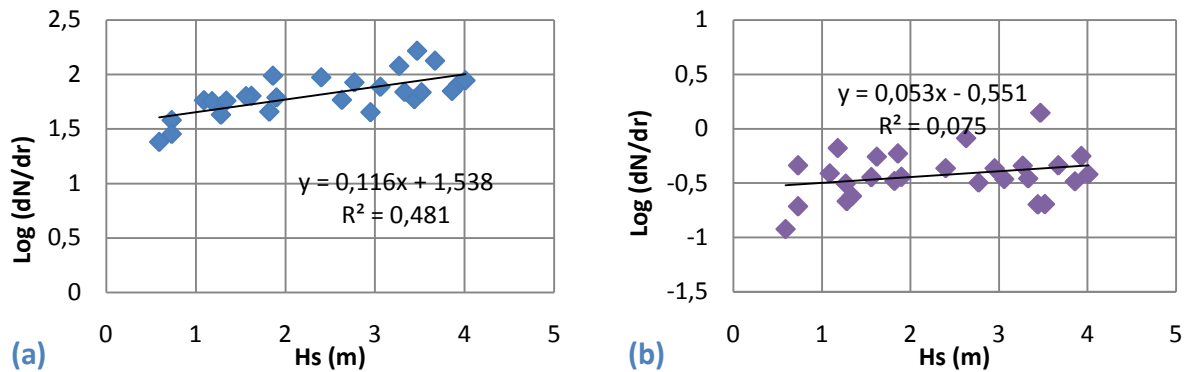


Figure 5-26 : Concentration en particules de  $0.5 \mu\text{m}$  (a) et  $5 \mu\text{m}$  (b) en fonction de la hauteur significative des vagues (vent SO)

## b. Longueur d'onde

La concentration en particules est tracée en fonction de la longueur d'onde des vagues sur la Figure 5-27. La concentration en particules tend à augmenter lorsque la longueur d'onde croît et notamment pour les petites particules. Comme dans le cas précédent, les grosses particules semblent moins influencées par ce paramètre que les petites particules.

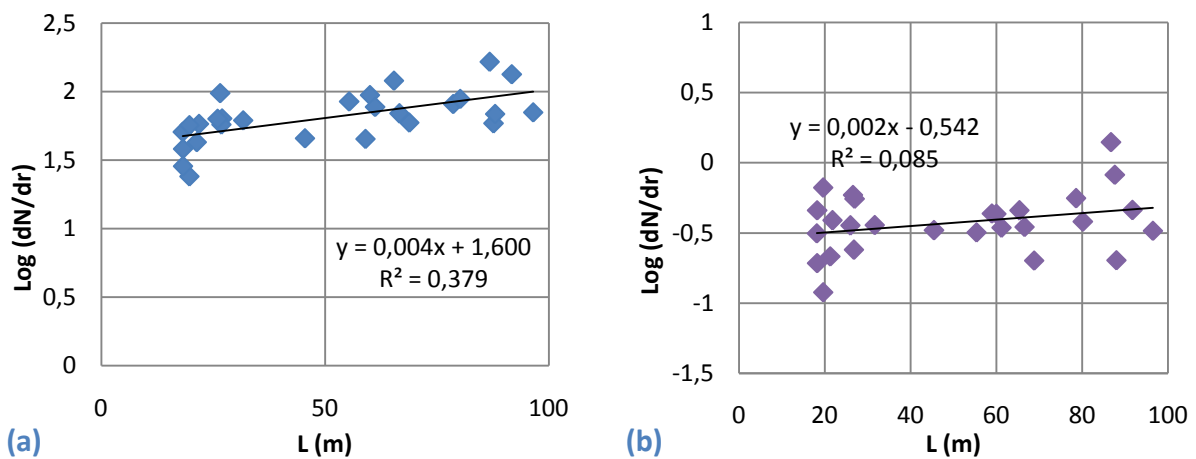


Figure 5-27 : Concentration en particules de  $0.5 \mu\text{m}$  (a) et  $5 \mu\text{m}$  (b) en fonction de la longueur d'onde des vagues, vent SO

## c. Période significative des vagues

La concentration croît en fonction de la période significative des vagues (Figure 5-28). Cependant, on distingue deux nuages de points de périodes 5 s et 8 s.



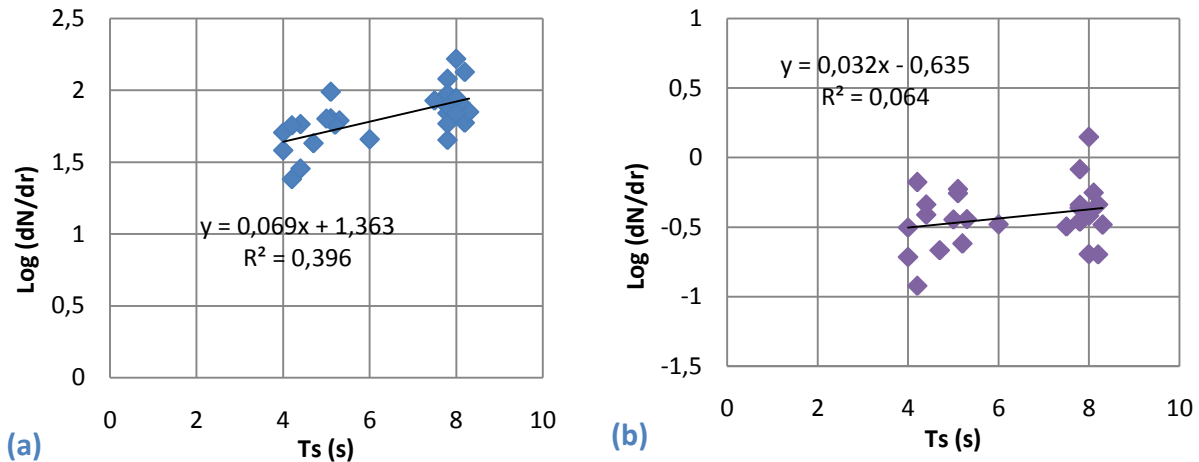


Figure 5-28 : Concentration en particules de 0.5  $\mu\text{m}$  (a) et 5  $\mu\text{m}$  (b) en fonction de la période significative des vagues, vent SO

#### d. Cambrure significative des vagues

La cambrure des vagues traduit l'instabilité de la crête de la vague. A partir d'un seuil critique, les vagues déferlent. La Figure 5-29 présente la concentration en fonction de la cambrure des vagues. On constate que le nombre de particules semble augmenter avec la cambrure des vagues. Cependant, la corrélation étant très faible, il est difficile d'estimer réellement l'impact de celle-ci.

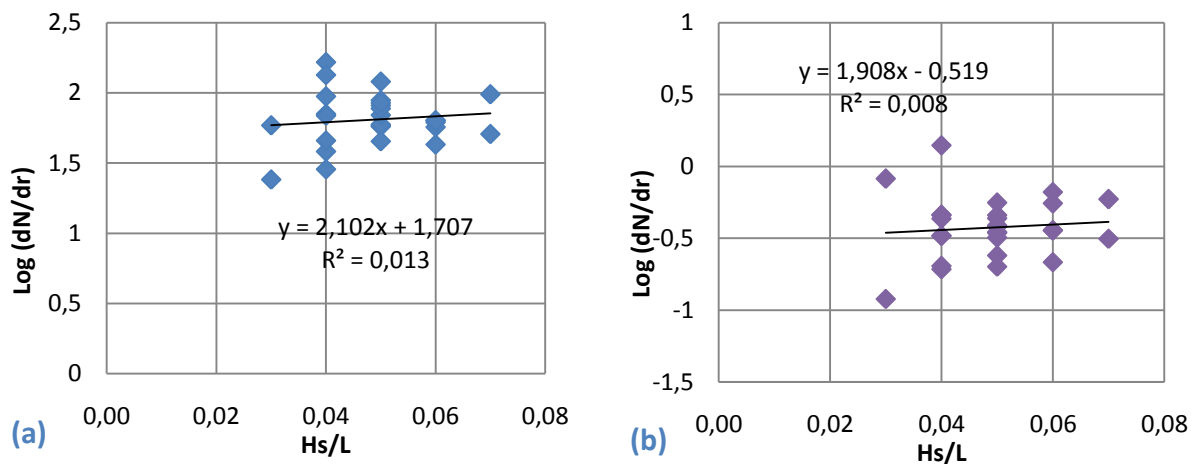
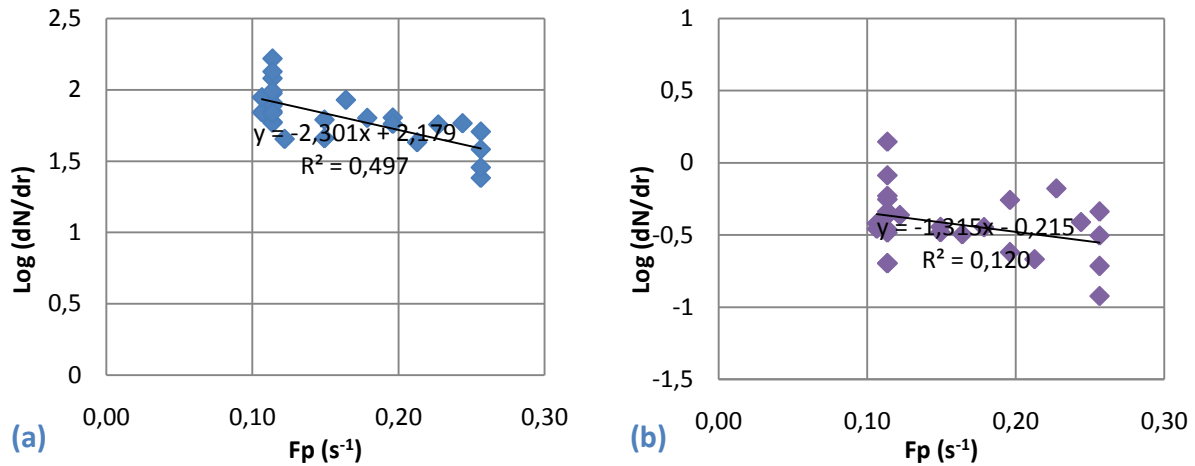


Figure 5-29 : Concentration en particules de 0.5  $\mu\text{m}$  (a) et 5  $\mu\text{m}$  (b) en fonction de la cambrure significative des vagues, vent SO

#### e. Fréquence pic

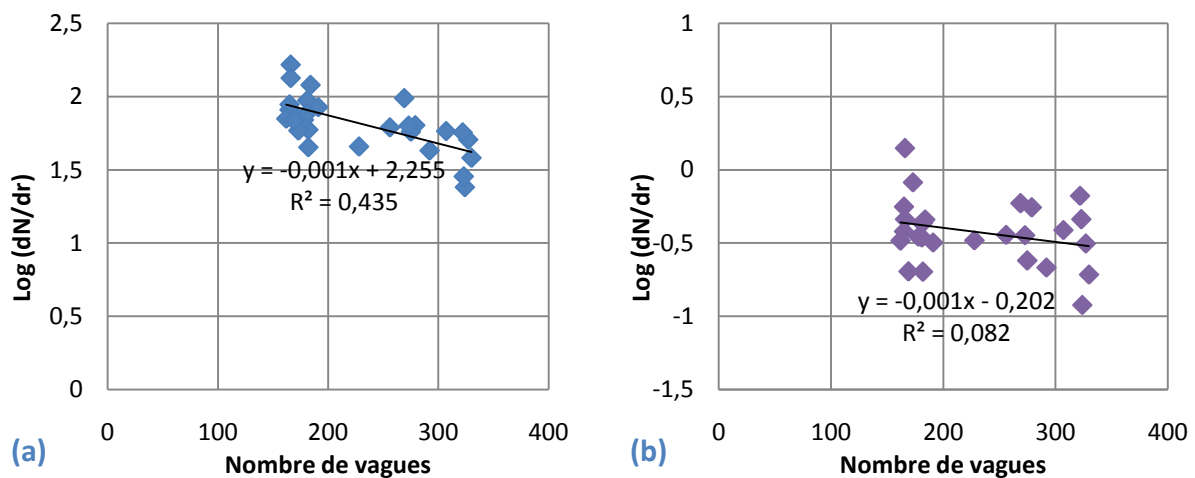
La Figure 5-30 présente le logarithme de la concentration en fonction de la fréquence pic des vagues. Ces deux grandeurs semblent reliées par une fonction linéaire décroissante. Plus les vagues sont rapprochées, moins il y a de particules.




 Figure 5-30 : Concentration en particules de  $0.5 \mu m$  (a) et  $5 \mu m$  (b) en fonction de la fréquence pic des vagues, vent SO

#### f. Le nombre de vagues :

Sur la Figure 5-31, on présente le logarithme de la concentration en fonction du nombre de vagues (défini par passage au niveau moyen par valeurs décroissantes). Plus les vagues sont nombreuses, moins la production semble efficace.


 Figure 5-31 : Concentration en particules de  $0.5 \mu m$  (a) et  $5 \mu m$  (b) en fonction du nombre de vagues, vent SO

#### g. Age des vagues

Le logarithme de la concentration semble augmenter avec l'âge des vagues (Figure 5-32). Cependant, le coefficient de détermination est très faible. Par ailleurs, on suppose généralement qu'en mer pleinement développé l'âge des vagues est de l'ordre de 1. Or, dans la majorité des cas on dépasse 1 puisque l'on n'est pas dans des conditions de mer de vent.

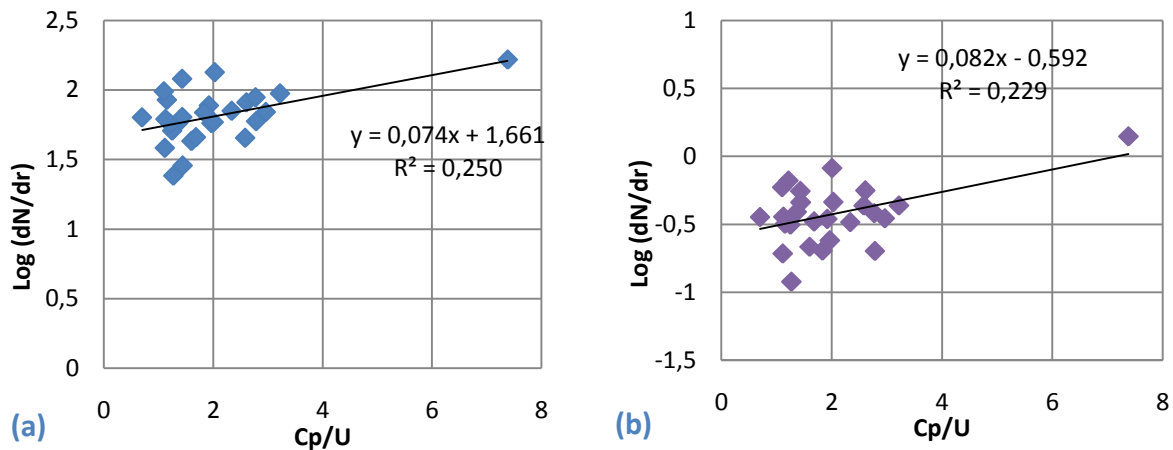


Figure 5-32 : Concentration en particules de 0.5  $\mu\text{m}$  (a) et 5  $\mu\text{m}$  (b) en fonction de l'âge des vagues, vent SO

### 5.4.5 Récapitulatif

Dans les sections 5.4.3 et 5.4.4, on a constaté que les différents paramètres météorologiques et océanographiques affectent la concentration en particules de manière plus ou moins importante. Le coefficient de corrélation traduit la dépendance et la linéarité entre le logarithme de la concentration et les différents paramètres météorologique et océanographiques. Il est tracé sur l'histogramme de la Figure 5-33. Notons qu'une trentaine de données ont permis de calculer les coefficients de corrélation pour les paramètres océanographiques et plusieurs milliers pour le vent ( $\approx 2220$ ).

L'influence des paramètres varie suivant la taille des particules, le coefficient de corrélation ne dépasse pas 0.3 pour les particules de 0.1 et 5  $\mu\text{m}$  alors qu'il varie entre 0.4 et 0.7 pour les particules de 0.5, 1 et 2.5  $\mu\text{m}$  (Figure 5-33). Pour les petites particules ( $\approx 0.1 \mu\text{m}$ ), sur le graphe, on constate que le coefficient de corrélation est de l'ordre de 3 pour le vent et est inférieur à 0.25 pour les paramètres océanographiques. Elles proviennent de différentes sources (continentales, marines) et peuvent être transportées sur plusieurs centaines de kilomètres et produites plusieurs jours, voire semaines, auparavant. Les paramètres de vent et de vagues, qui sont mesurés « localement et instantanément », sont donc peu représentatifs de leur concentration. A partir de 0.5  $\mu\text{m}$ , les particules sont essentiellement marines et issues de l'éclatement des bulles jusqu'à une dizaine de microns. Sur le graphe on voit que pour les particules de 0.5  $\mu\text{m}$ , le coefficient de corrélation pour la fréquence pic est de 0.73 alors qu'il est égal à 0.48 pour le vent alors que pour les particules de 1 et 2.5  $\mu\text{m}$ , les coefficients de corrélation pour la fréquence pic et le vent sont de l'ordre de 0.5. La concentration en particules de 0.5  $\mu\text{m}$  est plus influencée par le champ de vagues que par le vent, alors que l'influence des paramètres océanographiques et météorologique est identique pour les particules de l'ordre du micron. Quant aux grosses particules ( $\geq 5 \mu\text{m}$ ), l'influence des différents paramètres est plus difficile à évaluer, le coefficient de corrélation est

inférieur à 0.3 pour l'ensemble des paramètres météo et océanographiques. Elles ont tendance à retomber assez rapidement et n'atteignent pas toujours le capteur.

Parmi les paramètres décrivant le champ de vagues, la fréquence pic semble le plus influent, elle admet les valeurs des coefficients de corrélation les plus élevées. Par exemple, pour des particules de 1 et 2.5  $\mu\text{m}$ , les coefficients de corrélation pour la fréquence pic sont de l'ordre de 0.52 alors qu'ils sont inférieurs à 0.47 pour les autres paramètres océanographiques. Par ailleurs, la fréquence pic est directement reliée à la hauteur des vagues, la période, la longueur d'onde et le nombre de vagues par des fonctions affines avec des coefficients de corrélation supérieurs à 0.85. La Figure 5-33 montre que les coefficients de corrélation correspondant à la cambrure des vagues  $H_s/L$  et l'âge des vagues  $C_p/U$  ont les valeurs les plus basses. Cependant, cela n'exclut pas une dépendance autre que de type affine entre la production en particules et ces deux paramètres.

Notons que le déferlement parasite dû à la présence de rochers au pied de la station de Porquerolles peut accentuer l'influence des paramètres océanographiques sur la production en particules. Ceci peut en partie expliquer le faible coefficient de corrélation correspondant à la cambrure et à l'âge des vagues, et un champ de vague affectant plus la production que le vent. En effet, lorsque les vagues déferlent sur les rochers, les effets de la hauteur et la fréquence des vagues dominant sur les effets de l'état de développement de la mer puisque le déferlement a automatiquement lieu.

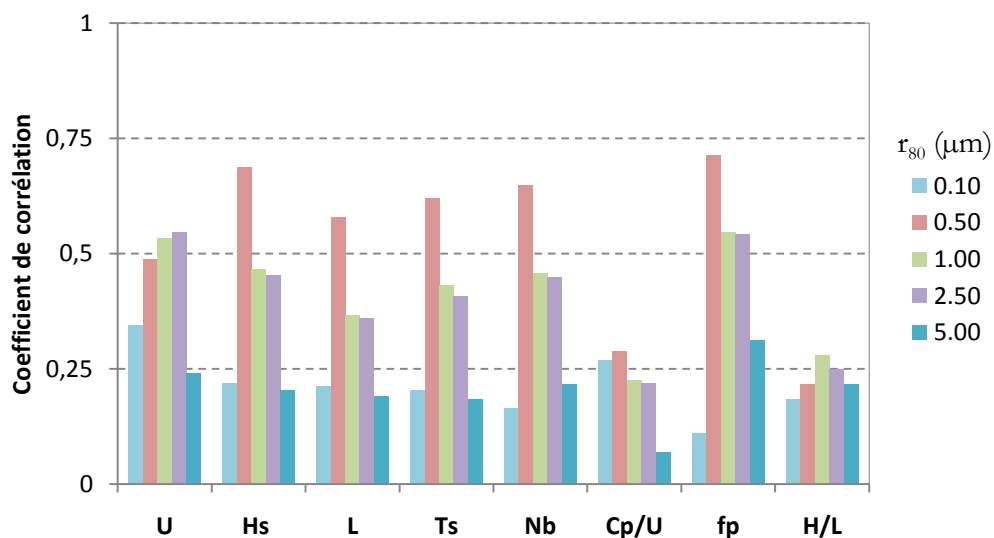


Figure 5-33 : Coefficient de corrélation des régressions linéaires de la concentration en fonction des différents paramètres météorologiques et océanographiques pour cinq tailles de particules

## 5.5 Conclusion

Durant la campagne de mesures MIRAMER 2008, le navire Atalante et la station de Porquerolles ont été équipés de sondes PMS et de capteurs météorologiques. Une bouée ancrée au sud de Porquerolles, installée par PREVIMER, a été équipée de capteurs océanographiques. En comparant les mesures acquises par le bateau et l'île, nous avons mis en évidence les effets du trait de côte sur la production en particules marines. L'étude de ces mesures a permis de déterminer l'influence des paramètres océanographiques et météorologiques sur la production en particules d'aérosols marins. En étudiant le coefficient de corrélation entre le logarithme de la concentration et différents paramètres météorologique et océanographiques, nous avons constaté que le champ de vagues avait autant d'influence que le vent sur la production en aérosols marins. Cependant, cette étude a été effectuée avec les données de Porquerolles, où l'on a pu constater un déferlement parasite dû à la présence de rochers. Ceci peut donc accentuer l'influence des différents paramètres du champ de vagues sur la production en particules marines.

Au vu de ces résultats, nous choisirons d'établir une fonction source dépendant de la vitesse du vent et du champ de vagues pour évaluer le flux de production d'aérosols marins en pleine mer. Nous utiliserons uniquement les mesures acquises en pleine mer par l'Atalante.

# **Chapitre 6. Fonction Source de la production primaire de l'aérosol marin**

## **6.1 Introduction**

Dans un modèle de transport d'aérosols marins, une des difficultés est consisté à estimer le flux de particules générées à l'interface air-mer. Il existe de nombreuses formulations empiriques décrivant ce flux, appelée fonction source. Elles ont été établies en laboratoire ou à partir de mesures effectuées sur l'ensemble de la planète. La campagne expérimentale MIRAMER 2008, nous a permis de mettre en évidence l'influence des conditions météorologiques et du champ de vagues sur la production en particules marines.

Ce chapitre est consacré à la mise en place d'une nouvelle fonction source. Nous utiliserons une méthode originale basée sur l'utilisation du modèle MACMod pour établir la formulation de la fonction source. Ensuite, nous validerons cette nouvelle fonction source en comparant les concentrations calculées par le modèle à 10 m d'altitude à des mesures de MIRAMER. Enfin, nous évaluerons la répartition verticale de la concentration en aérosols calculée par MACMod en la comparant aux distributions volumiques fournies par AERONET pour différentes stations en Méditerranée.

## **6.2 Méthodologie**

Nous avons mis en évidence, dans la section 4.3.2b, que les fonctions sources de Monahan et al. (1986) et de Sofiev et al. (2011) fournissaient les meilleurs résultats lors de comparaison modèle/mesures. Bien que, même si les coefficients de la fonction source de Monahan et al. (1986) sont empiriques, la formulation a un fondement physique. Elle se décompose en un ensemble de fonctions que l'on peut relier à chaque processus : whitecap, écrêtage, éclatement des bulles. C'est pourquoi nous baserons notre étude uniquement sur celle-ci. Cependant, elle a été établie en laboratoire dans une eau artificielle, d'où les différences observées avec les valeurs expérimentales, notamment en termes de modes. L'objectif est donc de modifier cette

formulation pour qu'elle corresponde aux conditions météorologiques et océanographiques de la région nord-méditerranéenne.

N°	Vent (m.s <sup>-1</sup> )	Fetch (km)	Hs (m)	Nombre de spectres
1	4.6	130	1.2	8
2	5.7	170	1.2	16
3	6.2	200	1.1	11
4	8.8	50	1.2	8
5	9.8	350	1.9	12
6	10.3	320	1.4	12
7	11.8	300	2	22
8	19.0	30	2.5	8
9	27.8	20	2.5	8

**Tableau 6-1 : Détails des séries de mesures acquises sur le navire Atalante durant la campagne MIRAMER (Demoisson et al., 2013)**

Nous disposons de 9 séries de données (Tableau 6-1) acquises sur l'Atalante durant MIRAMER, pour lesquelles le vent est compris entre 4.6 et 27.8 m.s<sup>-1</sup> et le fetch varie entre 20 et 350 km. Nous choisissons 3 séries de données qui serviront de valeurs étalons (séries n°1, 5 et 7). D'une part, ces trois séries ont été acquises en pleine mer avec des conditions de fetches longs ce qui réduit la présence de particules de source continentale dans les échantillons d'aérosols mesurés. D'autre part, elles correspondent à trois vitesses de vent (faible et moyen) donc à des concentrations en particules bien différentes. Les simulations sont faites en utilisant les mêmes conditions météorologiques et océanographiques. La fonction source de Monahan et al. (1986) est alors corrigée puis introduite dans le modèle. Les sorties de MACMod sont comparées aux résultats des trois séries de mesures étalons. L'opération de correction est alors répétée jusqu'à ce que le rapport entre les sorties du modèle et les valeurs expérimentales des trois séries soient inférieurs à 3. La valeur 3 correspond à la fiabilité des mesures (De Leeuw 1986; De Leeuw et al. 2000).

## 6.3 Modification de la fonction source de Monahan et al. (1986)

### 6.3.1 Monahan et al. (1986)

La fonction source de Monahan et al. (1986), M86, a été établie par la méthode du Whitecap à partir de mesures réalisées en laboratoire avec de l'eau salée artificiellement. Elle se décompose en trois termes :

$$\frac{dF}{dr} = W \times \tau^{-1} \times \frac{dE}{dr} \quad (6-1)$$

$W$  représente la fraction de couverture moutonneuse,  $\tau$  la constante de temps caractérisant la décroissance de la fraction de couverture moutonneuse et  $\frac{dE}{dr}$  correspond au nombre de gouttelettes produites par mètre carré de couverture moutonneuse (flux).

Monahan et al. (1986) utilisent la formulation de Monahan & Ó Muircheartaigh (1980) pour décrire la fraction de couverture moutonneuse (Eq. (6-2)). Ils considèrent alors que la vitesse du vent à 10 m est suffisante pour représenter le phénomène.

$$W(\%) = 3.75 \times 10^{-6} U_{10}^{3.41} \quad (6-2)$$

Le terme  $\frac{dE}{dr}$  est le produit de trois fonctions dépendant uniquement du rayon des particules à 80% d'humidité relative. Il s'exprime par :

$$\frac{dE}{dr_{80}} = \underbrace{r_{80}^{-3}}_I \times \underbrace{(1 + 0.0057 r_{80}^{1.05})}_{II} \times \underbrace{10^{1.19 \exp - B^2}}_{III} \quad (6-3)$$

$$\text{avec } B = \frac{(0.038 - \log r_{80})}{0.65}$$

Dans leur publication, Monahan et al. (1986) n'interprètent pas de façon physique l'origine de ces termes. La Figure 6-1 présente séparément ces trois fonctions en fonction du rayon des particules. Le terme I est une fonction décroissante dans l'intervalle de taille 0.1-10  $\mu\text{m}$ . Nous supposons que ce terme traduit la décroissance de la production de particules avec l'augmentation de leur taille. Le terme II est égal à 1 jusqu'à environ 10  $\mu\text{m}$  puis augmente avec la taille des particules. Vu que le processus d'écèlement démarre à partir de 10  $\mu\text{m}$ , nous supposons alors que ce terme traduit la production en particules par écèlement. Le terme III a l'allure d'une gaussienne de valeur minimale égale à 1 et centrée sur un rayon de l'ordre de 2.4  $\mu\text{m}$ . Il n'intervient alors que dans la gamme de taille 0.5-10  $\mu\text{m}$ . Nous pouvons supposer que cette fonction traduit la production en particules issues de l'écèlement des bulles, comme il a été vu dans la section 2.3.1.

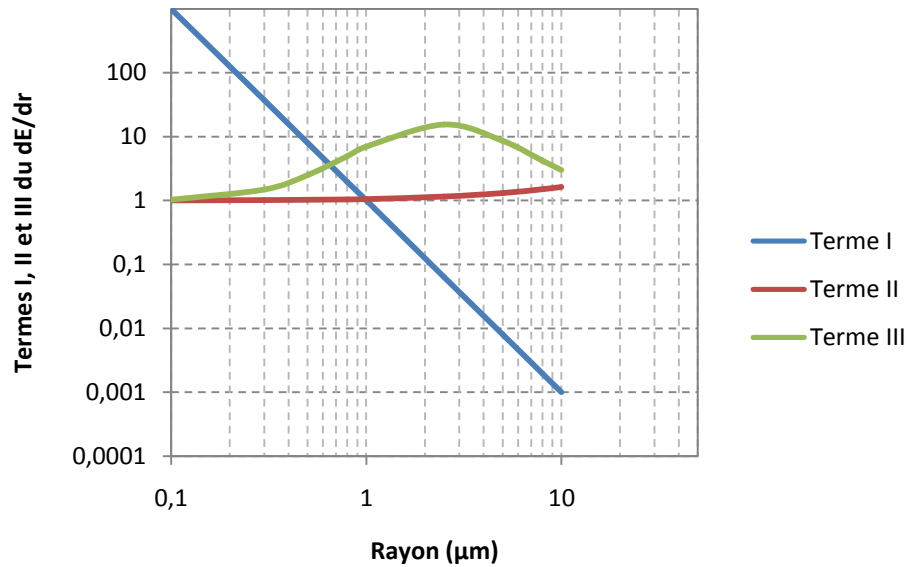


Figure 6-1 : Décomposition du dE/dr en 3 termes

### 6.3.2 Modification de la formulation du Whitecap

La campagne de mesures MIRAMER nous a permis de mettre en évidence une relation entre la hauteur des vagues et la concentration en aérosols marins. L'idée est alors de décrire la fraction de couverture moutonneuse comme une fonction de la vitesse du vent et de la hauteur des vagues.

La fraction de couverture moutonneuse s'exprime généralement sous la forme d'une puissance de la vitesse du vent à 10 m. Cependant, il existe des formulations prenant en compte l'état de mer à travers l'âge des vagues défini comme le rapport entre la vitesse de phase des vagues  $C_p$  et le vent  $U_{10}$ .

Kraan et al. (1996) ont établi une relation entre la couverture moutonneuse active et l'âge des vagues en comparant des mesures de couverture moutonneuse active avec un modèle de dissipation de l'énergie des vagues par le déferlement. Ce dernier suppose que seul le whitecap actif joue dans la dissipation d'énergie. Il donne la formule suivante :

$$W(\%) = 96 \left( \frac{C_p}{u_*} \right)^{-2.08} \quad (6-4)$$

Lafon et al. (2007) ont établi une formule pour la région méditerranéenne suivant l'état de développement de la mer. Il est caractérisé par la valeur de l'âge des vagues. Ils proposent les relations suivantes :



$$W(\%) = \begin{cases} 70 \left( \frac{C_p}{U_{10}} \right)^{8.5} & \text{pour } \frac{C_p}{U_{10}} \leq 0.68 \\ 0.65 \left( \frac{C_p}{U_{10}} \right)^{-4.1} & \text{pour } \frac{C_p}{U_{10}} > 0.68 \end{cases} \quad (6-5)$$

La vitesse de phase des vagues est définie par la relation suivante :

$$C_p = \frac{g}{2\pi f_p} \quad (6-6)$$

L'exploitation des données de la campagne MIRAMER a permis de mettre en évidence une relation empirique entre la fréquence pic et la hauteur des vagues. Le coefficient de corrélation vaut 0.95.

$$f_p = \frac{1}{1.4371H_s + 3.0281} \quad (6-7)$$

La vitesse de phase des vagues peut s'exprimer en fonction de la hauteur des vagues. De là, en découle la relation du whitecap en fonction de la hauteur des vagues :

Pour Kraan et al. (1996), l'expression (6-4) devient :

$$W(\%) = 96 \left( \frac{(1.4371H_s + 3.0281) \times g}{2\pi u_*} \right)^{-2.08} \quad (6-8)$$

Pour Lafon et al. (2007), l'expression (6-5) s'écrit alors :

$$W(\%) = \begin{cases} 70 \left( \frac{(1.4371H_s + 3.0281) \times g}{2\pi U_{10}} \right)^{8.5} & \text{pour } \frac{C_p}{U_{10}} \leq 0.68 \\ 0.65 \left( \frac{(1.4371H_s + 3.0281) \times g}{2\pi U_{10}} \right)^{-4.1} & \text{pour } \frac{C_p}{U_{10}} > 0.68 \end{cases} \quad (6-9)$$

La formule de Lafon et al. (2007) est bien adaptée pour les mers jeunes (De Leeuw et al. 2011). Or, durant les mesures de la campagne MIRAMER, la mer était généralement pleinement développée. Quant à la formulation de Kraan et al. (1996), elle a été établie à partir de mesures effectuées en mer du Nord, où le vent et les conditions océanographiques (fréquence des vagues, température de l'eau) diffèrent de la région méditerranéenne. Cependant, elle utilise la vitesse de friction du vent qui nous semble plus représentative de l'interaction vent-vague que la vitesse du vent.

Pour compenser ces lacunes, nous modifions la formule basée sur le modèle de Kraan et al. (1996). Les coefficients de la formule sont recalculés pour les conditions environnementales rencontrées lors de la campagne MIRAMER. La formule obtenue sera plus représentative de la zone côtière méditerranéenne. Elle s'écrit (Demoisson et al., 2013) :

$$W(\%) = 416.9 \left( \frac{(1.4371H_s + 3.0281) \times g}{2\pi u_*} \right)^{-2.708} \quad (6-10)$$

La Figure 6-2 illustre ces différentes formulations de la couverture moutonneuse en fonction de la vitesse du vent. Nous avons pris des hauteurs de vagues de 0.5 m et 2 m lorsque le vent est inférieur et supérieur à 5 m.s<sup>-1</sup>, respectivement. Nous constatons que les whitecaps de Monahan et Ó Muircheartaigh (1980) et Lafon et al. (2007) sont plus grands que ceux de Kraan et al. (1996) et Demoisson et al. (2013). Ceci a donc tendance à réduire le flux de production lorsque la formulation de Demoisson et al. (2013) est utilisée.

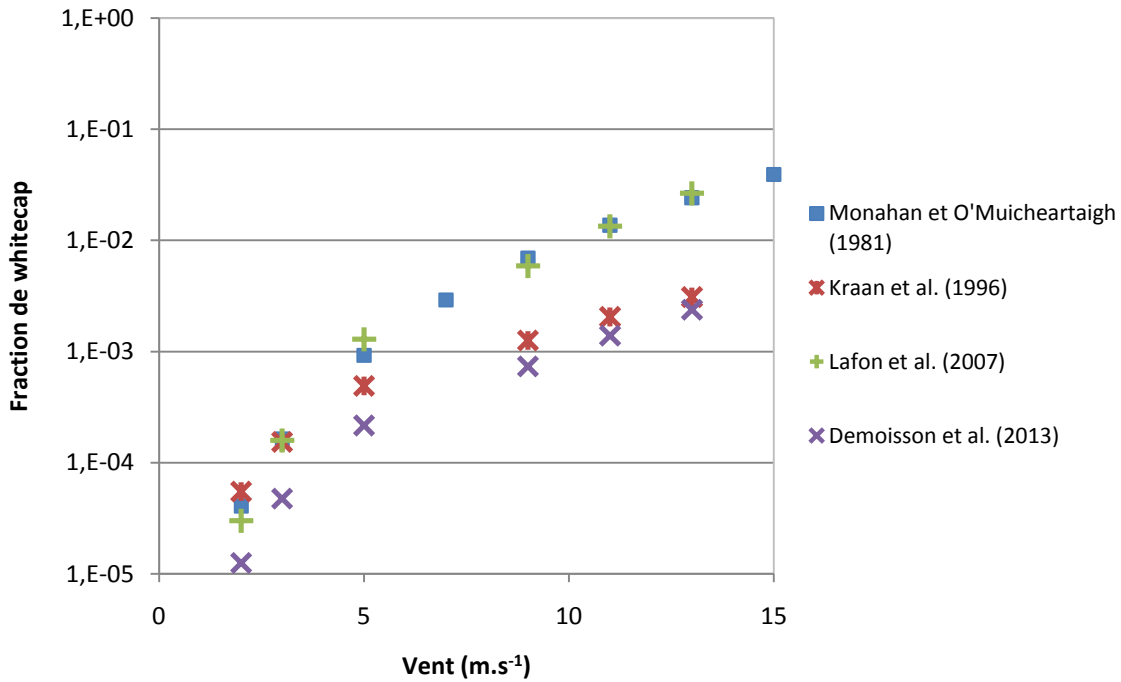


Figure 6-2 : Couverture moutonneuse en fonction du vent

### 6.3.3 Modification du dE/dr

L'exploitation des mesures acquises durant la campagne de mesures MIRAMER a mis en évidence la distinction entre les modes des gouttes de jet et des gouttes de film issues de l'éclatement des bulles ainsi que le pic d'accumulation de particules (*cf.* section 5.4.3).

Dans la littérature, les classes de taille des particules d'aérosols marins varient selon les articles, mais les auteurs s'accordent généralement pour identifier les gouttes de film aux rayons inférieurs à 1 µm et les gouttes de jet aux rayons compris entre 1 et 8 µm (Guelle et al. 2001; F. J. Resch et al. 1986; Woolf et al. 1987; M. H. Smith et al. 1993; Wu 2001). L'objectif ici est de corriger le terme III de l'expression  $\frac{dE}{dr}$  (6-3) afin de différencier les différents modes.

Le terme III de l'expression du  $\frac{dE}{dr}$  se présente sous la forme d'une gaussienne. La modification consiste alors à remplacer cette gaussienne par une somme de trois gaussiennes représentant la production des gouttes de jet ( $r_{\text{modal}} = 3.57 \mu\text{m}$ ), la production des gouttes de film ( $r_{\text{modal}} = 0.3 \mu\text{m}$ ) et le mode nucléation des particules ( $r_{\text{modal}} = 0.03 \mu\text{m}$ ). Les rayons modaux sont établis à partir des résultats des mesures de MIRAMER. L'expression  $\frac{dE}{dr}$  devient (Demoisson et al. 2013, D13) :

$$\frac{dE}{dr_{80}} = 1.26 \times 10^6 \times \underbrace{r^{-3}}_{\text{I}} \times \underbrace{(1 + 0.057r^{1.05})}_{\text{II}} \times \underbrace{10^{\sum_{i=1}^3 A_i \exp B_i^2}}_{\text{III}} \quad (6-11)$$

avec,

$$\begin{aligned} A_1 &= 4.5 \quad ; \quad A_2 = 0.408 \quad ; \quad A_3 = 0.931 \\ B_1 &= \frac{-1.53 - \log_{10} r_{80}}{0.55} \\ B_2 &= \frac{-0.51 - \log_{10} r_{80}}{0.57} \\ B_3 &= \frac{0.57 - \log_{10} r_{80}}{0.52} \end{aligned} \quad (6-12)$$

Sur la Figure 6-3, sont représentés les deux termes III du  $\frac{dE}{dr}$  en fonction de la taille des particules (celle de M86 et la notre, D13, qui est également décomposée pour les trois gaussiennes). Les plus grosses différences entre les deux formulations apparaissent pour les particules inférieures à  $0.3 \mu\text{m}$  alors qu'au-delà de  $5 \mu\text{m}$ , les résultats sont identiques. Dans le terme III de D13, le mode représentant les gouttes de film est moins marqué que celui représentant les gouttes de jet. En effet, ceci correspond aux résultats de la section 2.3, où nous avons pu voir que l'océan produisait majoritairement des gouttes de jet lors de l'éclatement des bulles.

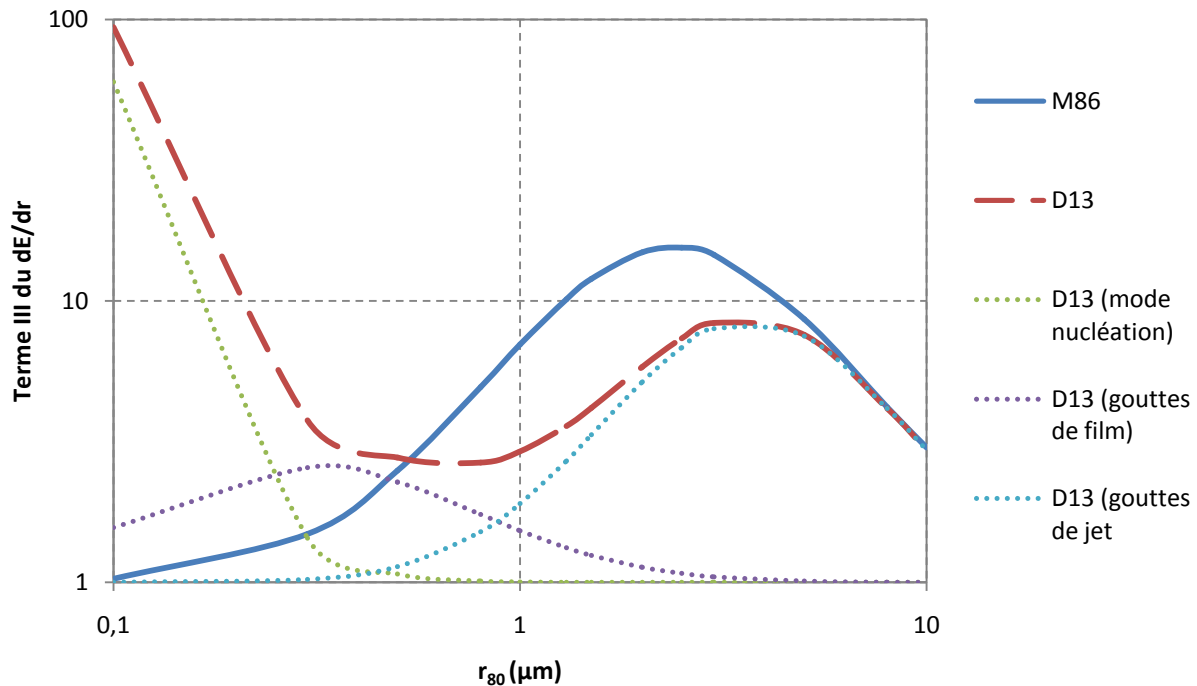


Figure 6-3 :  $dE/dr$  de Monahan et al. (1986) et Demoisson et al. (2013) en fonction du rayon des particules

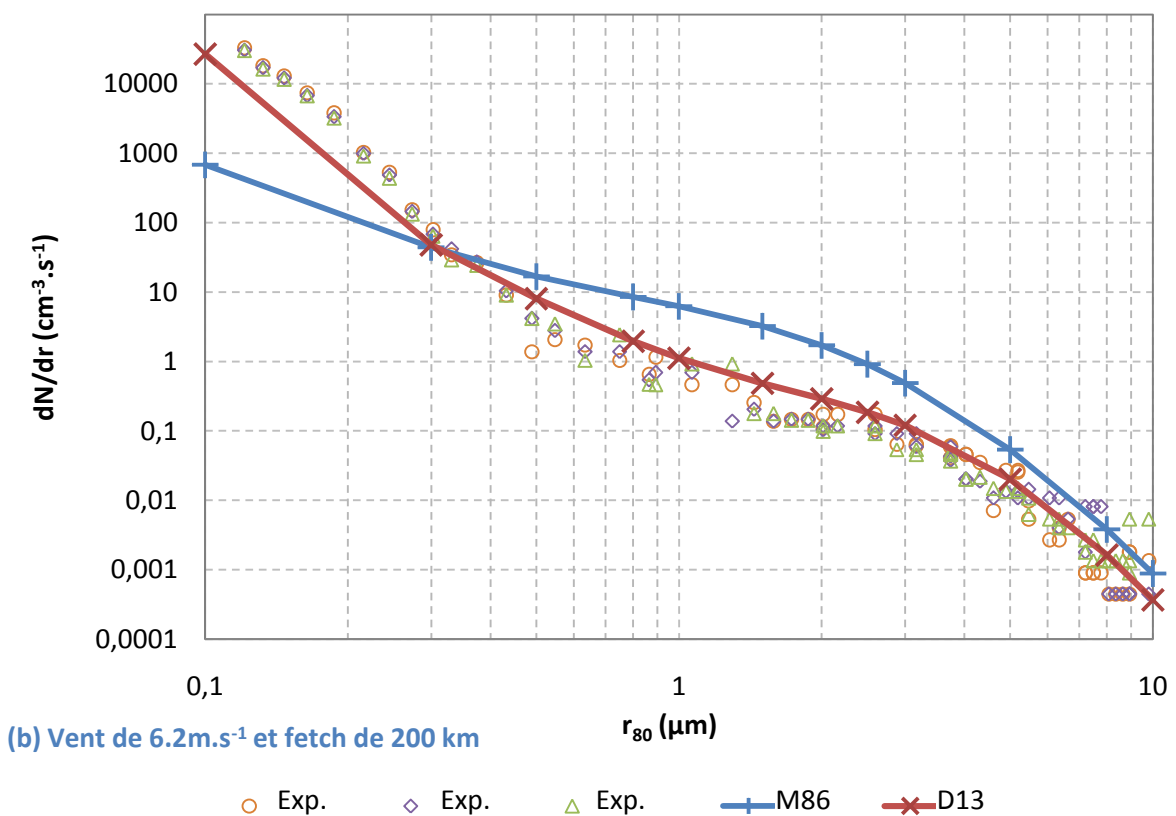
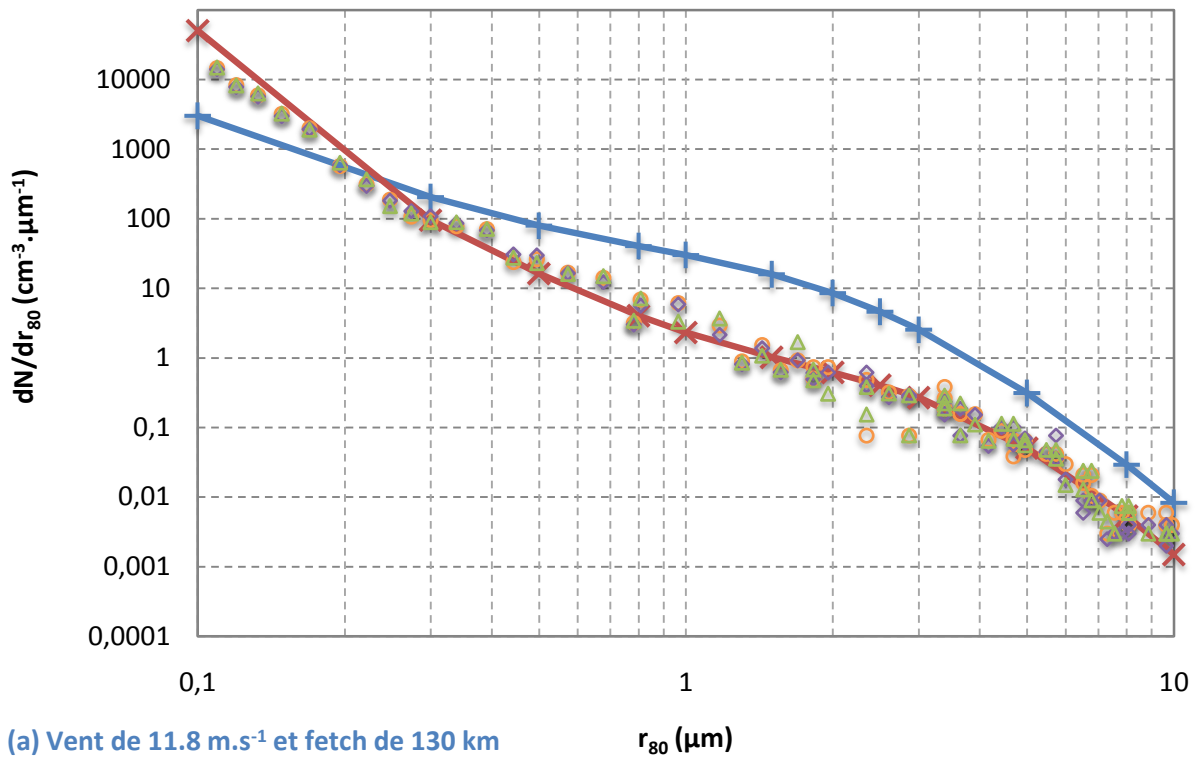
## 6.4 Validation de la nouvelle fonction source dans MACMod

### 6.4.1 Evaluation de la concentration en aérosols marins à 10 m d'altitude

Nous effectuons des simulations avec MACMod pour les mêmes conditions que les trois séries de mesures ayant permis de calibrer la nouvelle fonction source (en italique dans le Tableau 6-1) et six autres séries réalisées dans d'autres conditions de mer et de vent (en noir dans le Tableau 6-1). Ainsi, nous avons un ensemble de neuf conditions de mesures/simulations (3 calibration + 6 autres).

La Figure 6-4 (a, b et c) représente les concentrations en particules mesurées, modélisées avec la nouvelle fonction source et modélisées avec la fonction source de Monahan et al. (1986). Sur chaque graphique, la concentration est représentée en fonction du rayon des particules. La Figure 6-4a correspond à un vent de  $11.8 \text{ m.s}^{-1}$  (série n°7 dans le Tableau 6-1, série étalon), la Figure 6-4b à un vent de  $6.2 \text{ m.s}^{-1}$  (série n°3 dans le Tableau 6-1) et la Figure 6-4c à un vent de  $27.8 \text{ m.s}^{-1}$  (série n°9 dans le Tableau 6-1). Nous constatons une nette amélioration des sorties du modèle

avec la nouvelle fonction source, les sorties du modèle coïncident avec les mesures même pour celles qui n'ont pas servi à calibrer la fonction source (Figure 6-4 b et c).



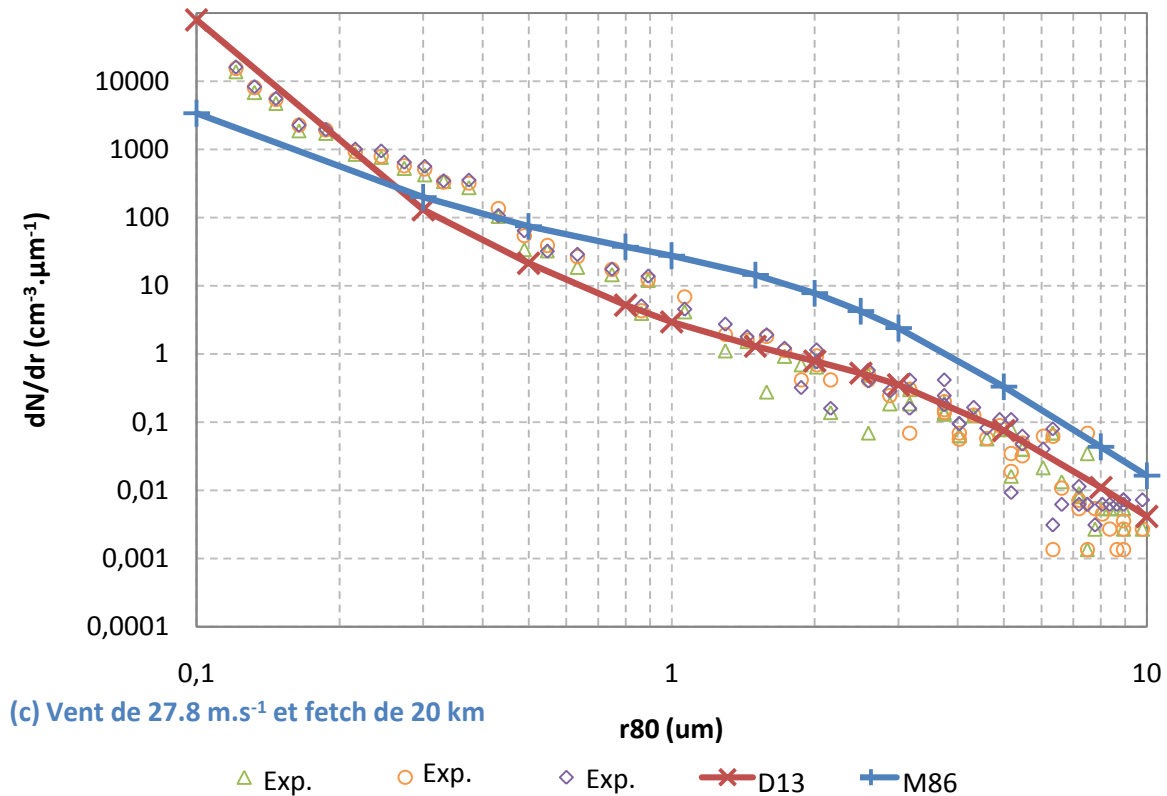


Figure 6-4 : Comparaison entre les mesures effectuées durant la campagne MIRAMER, MACMod utilisant D13 et MACMod utilisant M86

Pour chaque condition de vent et de mer, le Tableau 6-2 indique le facteur de confiance à 68% (cf. section 4.3.2b) déterminé à partir du rapport entre les sorties de MACMod utilisant D13 et M86 et les données expérimentales. La moyenne des rapports est calculée sur l'ensemble des rayons. Les cases écrites en italique correspondent aux trois conditions de vent et de mer ayant servi à calibrer D13. Le facteur de confiance est inférieur à 3 pour D13 alors qu'il varie entre 4 et 15 pour M86 pour l'ensemble des conditions. Les résultats sont nettement améliorés avec la nouvelle fonction source. De plus, les résultats sont corrects avec des conditions de vent et de mer autres que les trois ayant servi à calibrer D13 et notamment pour des vents forts.

Vent (m.s <sup>-1</sup> )	<i>4.6</i>	<i>5.7</i>	<i>6.2</i>	<i>8.7</i>	<i>9.8</i>	<i>10.3</i>	<i>11.8</i>	19	27.8
D13	2.85	2.81	2.57	2.33	<i>1.43</i>	2.72	<i>1.50</i>	2.03	3.94
M86	4.00	4.80	11.97	2.98	<i>14.12</i>	14.61	<i>13.77</i>	6.19	7.39

Tableau 6-2 : Facteur de confiance à 68% en fonction des conditions de vent et de mer, pour l'ensemble des rayons. (Demoisson et al. 2013)

Le Tableau 6-3 reporte le facteur de confiance en fonction de chaque rayon pour D13 et M86 par rapport aux données expérimentales. Il est calculé sur l'ensemble des conditions météo. Quelque soit la taille des particules, les sorties du modèle sont meilleures avec D13. Cependant, pour les

particules de 0.1 et de 10  $\mu\text{m}$ , le facteur est de l'ordre de 5-6 alors que pour les particules de la gamme 0.5-5  $\mu\text{m}$ , le facteur de confiance est inférieur à 2.5 (Tableau 6-3).

Rayon ( $\mu\text{m}$ )	0.1	0.5	1	2.5	5	10
D13	5.91	2.47	1.90	1.89	2.32	5.68
M86	5 299.67	7.21	14.83	15.43	10.66	8.80

Tableau 6-3 : Facteur de confiance à 68% pour l'ensemble des neuf conditions de vent et de mer. (Demoisson et al., 2013)

Pour les particules de 0.1  $\mu\text{m}$ , les concentrations dépendent fortement des conditions météorologiques et océanographiques antérieures à la prise de mesures du fait qu'elles peuvent résider plusieurs semaines dans l'atmosphère. Il est donc possible que la fonction source prenne en compte le bruit de fond en plus de la production locale. Sur la Figure 6-3, on peut constater que le flux de production correspond essentiellement au mode nucléation (courbe verte) pour cette gamme de taille. Le terme correspondant au mode nucléation dans la fonction source (Eq. (6-11)) est probablement surestimé.

La fonction source estime le flux de production au niveau de la première maille verticale (à 0.45 m). Or, pour calibrer la fonction nous avons utilisé des mesures effectuées à 10 m de hauteur. Les particules de 10  $\mu\text{m}$  sont soumises à leur gravité, par conséquent, le gradient vertical de leur concentration est prononcé et elles ne s'élèvent pas toujours jusqu'au capteur. Leur concentration mesurée peut être entachée d'une erreur qui se répercute sur le calcul du flux au niveau de la première maille verticale.

Dans la gamme de taille 0.5-5  $\mu\text{m}$ , la fonction source estime correctement le flux de production d'aérosol marin. La possible erreur dans la fonction source sur le mode nucléation (Eq. (6-11)) ne modifie pas les résultats. En effet, en supprimant le terme correspondant au mode nucléation dans l'équation ((6-11)), les concentrations calculées par MACMod diffèrent de moins de 10% avec celles calculées avec la fonction source décrite dans l'équation (6-11). Le facteur de confiance entre le modèle et les mesures reste donc inchangé.

MACMod possède une procédure qui calcule séparément la fraction de couverture moutonneuse. Il est donc possible d'utiliser d'autres formulations du whitecap pour la nouvelle fonction source. Nous effectuons des simulations avec les formulations du whitecap de Monahan & Ó Muircheartaigh (1980), Lafon et al. (2007), Kraan et al. (1996) et la notre (Demoisson et al. 2013) combiné à notre expression du  $\frac{dE}{dr}$  (6-3). Les calculs sont effectués pour des particules de 1  $\mu\text{m}$  et les trois conditions de vent ayant servi à calibrer D13. Effectuant les comparaisons uniquement pour trois conditions de vent, nous préférons directement étudier le rapport entre les concentrations modélisées et les mesures plutôt que le facteur de confiance. Le Tableau 6-4 présente ces rapports de concentration. Les valeurs des rapports sont très correctes quelque soit la formulation du whitecap utilisée, elles sont inférieures à 3 ce qui correspond à la fiabilité des

mesures. L'influence de la formulation du whitecap est moins importante que celle du  $\frac{dE}{dr}$ . On obtient néanmoins les meilleurs résultats avec notre formulation du whitecap.

U (m.s <sup>-1</sup> )	Monahan & Ó Muircheartaigh (1980)	Lafon et al. (2007)	Kraan et al. (1996)	Demoisson et al. (2013)
4.6	1.88	2.01	2.27	0.87
9.8	1.91	4.86	2.09	1.14
11.8	1.05	3.86	1.41	0.88

Tableau 6-4 : Rapport de concentration MACMod/Mesures avec différentes formulations du whitecap et le  $dE/dr$  modifié (Demoisson et al., 2013)

La concentration calculée par le modèle utilisant notre fonction source pour une altitude de 10 m est fiable d'un facteur de confiance (68%) égal à 3 dans la gamme de taille 0.5-5  $\mu\text{m}$ . Le modèle est donc fiable dans la couche de surface, où le gradient vertical de concentration est peu marqué (surtout pour les petites particules). Pour des altitudes plus élevées, nous nous demandons alors si les résultats sont toujours aussi fiables.

## 6.4.2 Evaluation de la répartition verticale des aérosols dans MACMod

L'objectif de cette sous-section est alors d'étudier la répartition verticale des aérosols calculée par MACMod. Ne disposant pas de mesures de profils verticaux de concentration ou de mesures en altitude, nous utiliserons les différentes distributions volumiques intégrées sur la verticale fournies par le réseau AERONET que nous comparerons à des simulations MACMod.

### a. Stations de mesures du réseau AERONET en Mer Méditerranée

Le programme « AErosol RObotic NETwork » (AERONET) est un réseau mondial de mesures d'aérosols accessibles au domaine public. Ce réseau établi par la NASA et PHOTONS est le fruit d'une collaboration entre de nombreuses agences nationales, instituts et universités. Ce programme impose une standardisation des mesures. Les produits fournis par AERONET sont les mesures d'épaisseur optique (AOD), les produits d'inversions et l'eau précipitée dans les différentes classes d'aérosols. La qualité des mesures de l'épaisseur optique et de ses produits dérivés dépend de la détection de la couverture nuageuse : Level 1.0 (unscreened), Level 1.5 (cloud-screened) et Level 2.0 (cloud-screened et qualité assurée).





Figure 6-5 : Station du réseau AERONET dans la région ouest Méditerranéenne

Nous sélectionnons plusieurs stations situées en mer Méditerranée du réseau AERONET (Figure 6-5). Les différentes stations choisies sont soumises à des conditions météorologiques, océanographiques et géographiques différentes. Ces stations sont généralement installées sur des îles ; les fetches sont alors relativement longs, voire infinis. On sélectionne de préférence les stations près des côtes et de basse altitude.

Pour chaque station, on sélectionne de une à plusieurs séries de mesures dans des conditions de vent on-shore supérieur à  $5 \text{ m.s}^{-1}$  et en l'absence de nuages.

### Palma de Mallorca

La station, à l'ouest de l'île, est partiellement protégée des vents en provenance du nord et de l'ouest par une bande de terre de 20 km environ et d'une élévation de plusieurs centaines de mètres. Ne disposant pas de mesures où la station n'est pas abritée par la terre (vent de secteur sud), nous sélectionnons alors la série de mesures du 17 décembre 2011 à 12h où le vent est orienté nord-ouest sur l'île (Figure 6-6). Les masses d'air, originaires de l'Atlantique, traversent l'Espagne puis parcourent 200 km de mer avant d'arriver sur l'île. On peut supposer qu'une partie des aérosols se déposent sur la bande de terre avant d'arriver à la station.



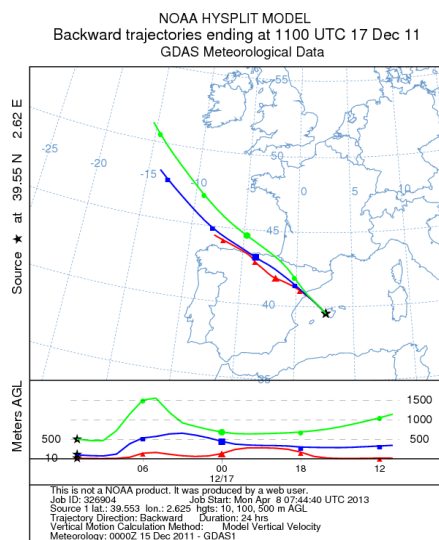


Figure 6-6 : Retro-trajectoire à Palma de Mallorca le 17/12/2011 à 12h (Hysplit)

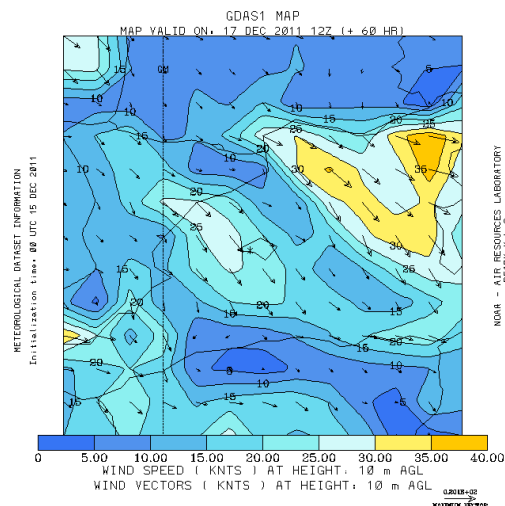


Figure 6-7 : carte des vents à Palma de Mallorca le 17/12/2011 à 12h (Hysplit)

Latitude	Longitude	Elévation (m)	Distance station-mer (km)
39.553	2.625	10	20
Vent (m.s-1)	Direction (°)	Fetch (km)	
4	290	200	

Tableau 6-5 : Palma de Mallorca

Lampedusa

Lampedusa est à mi chemin entre la Tunisie et la Sicile. Suivant le régime des vents, l’île est sujette à des épisodes de poussières sahariennes. La station de Lampedusa se situe sur la pointe est de l’île à 45 m d’altitude et à quelques centaines de mètres de la mer. Lorsque le vent est orienté de nord-ouest à sud-est, la station est directement arrosée par les aérosols marins. On sélectionne deux séries de mesures lors de vents forts orientés est et nord : le 24/04/2011 et le 20/07/2011(Tableau 6-6).



	Latitude	Longitude	Elévation (m)	Distance station-mer (km)
	35.517	12.632	45	négligeable
24/04/2011	Vent (m.s-1)	Direction (°)	Fetch (km)	Humidité Relative
	14	80	1000	
20/07/2011	Vent (m.s-1)	Direction (°)	Fetch (km)	Humidité Relative
	12	350	1000	

Tableau 6-6 : Lampedusa

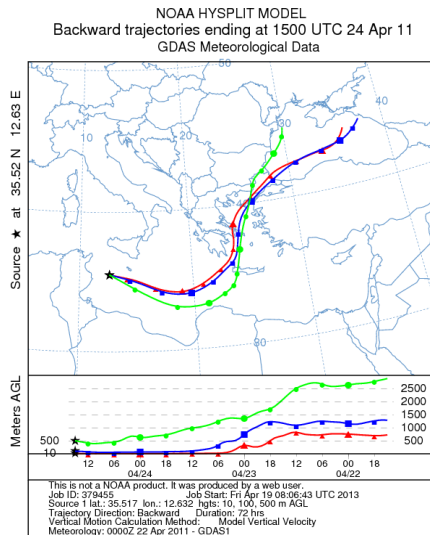


Figure 6-8 : Retro-trajectoire à Lampedusa le 24/04/2011 à 15h (Hysplit)

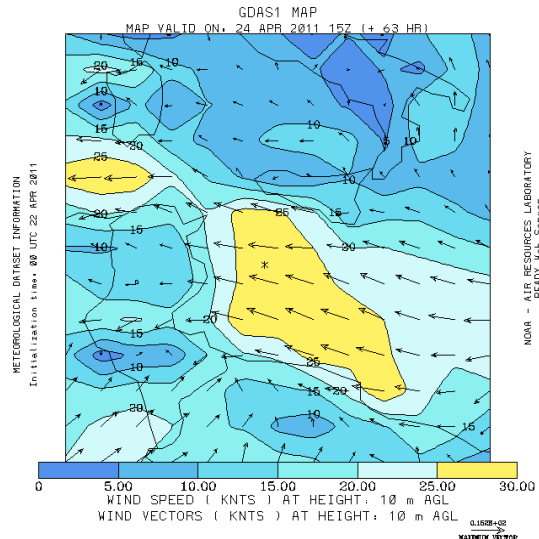


Figure 6-9 : carte des vents à Lampedusa le 24/04/2011 à 15h (Hysplit)

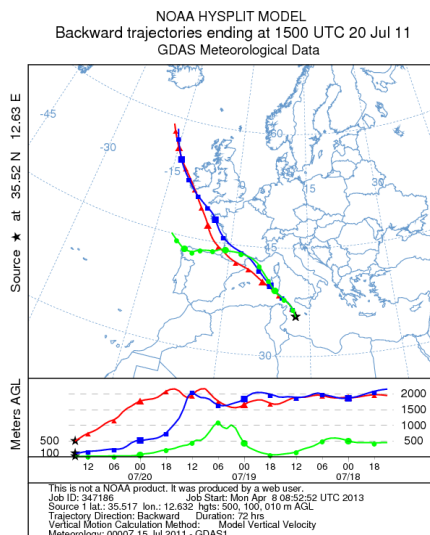


Figure 6-10 : Retro-trajectoire à Lampedusa le 20/07/2011 à 15h (Hysplit)

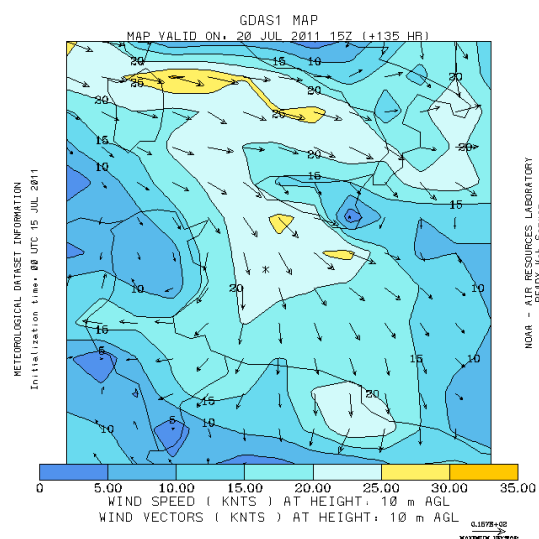


Figure 6-11 : carte des vents à Lampedusa le 20/07/2011 à 15h (Hysplit)

## Ersa

La station d'Ersa se situe à l'ouest du Cap Corse, à quelques dizaines de mètres du bord de mer et à une altitude de 80 mètres. Elle est directement arrosée par les aérosols marins générés lors de vents de directions est à nord. On sélectionne deux séries de mesures lors de vents moyens orientés est et nord-ouest correspondant respectivement à des fetches de 150 et 500 km.



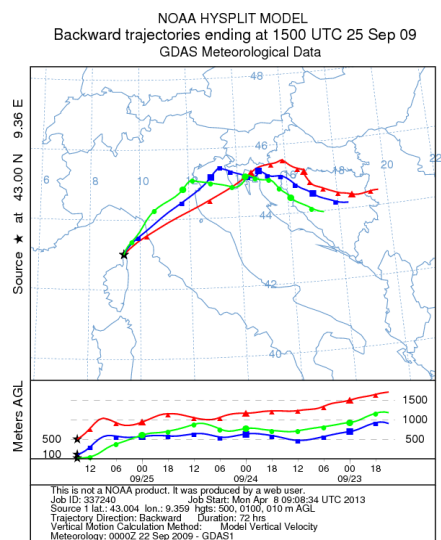


Figure 6-12 : Retro-trajectoire le 25/09/2009 à 15h à Ersa

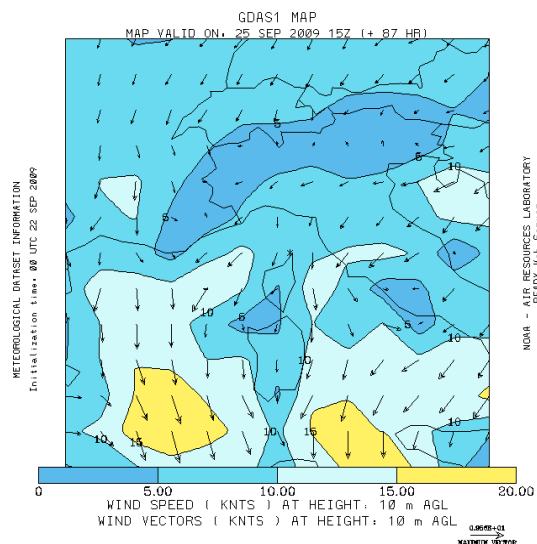


Figure 6-13 : Carte des vents (b) le 25/09/2009 à 15h à Ersa

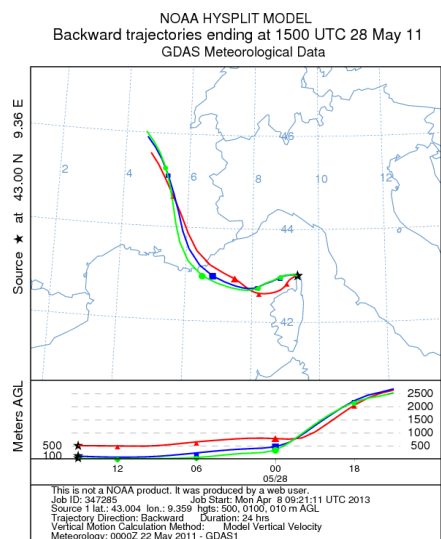


Figure 6-14 : Retro-trajectoire le 28/05/2011 à 15h à Ersa

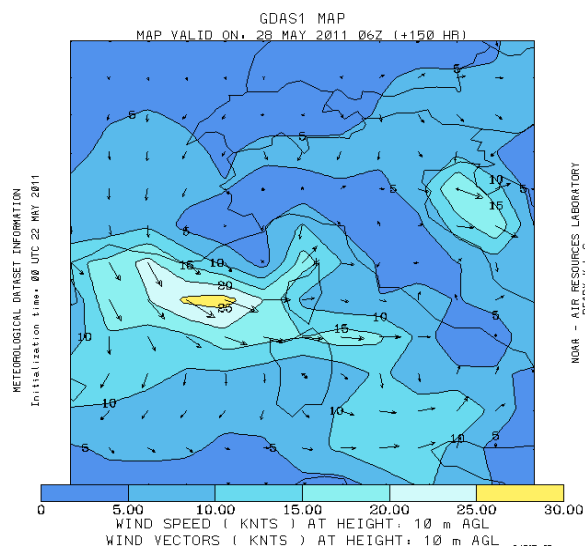


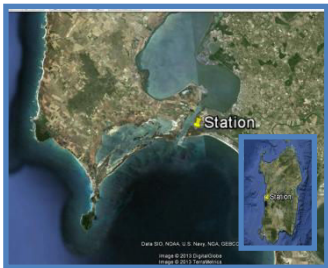
Figure 6-15 : Carte des vents le 28/05/2011 à 15h à Ersa

	Latitude	Longitude	Elévation (m)	Distance station-mer (km)
	43.004	9.359	80	0.25
25/09/2009	Vent (m.s <sup>-1</sup> )	Direction (°)	Fetch (km)	Humidité Relative
	8	25	150	
28/05/2011	Vent (m.s <sup>-1</sup> )	Direction (°)	Fetch (km)	Humidité Relative
	7	280	500	

Tableau 6-7 : Ersa

Oristano

La station d'Oristano située en Sardaigne est protégée par une bande de terre de 8 km de large lorsque les vents sont orientés nord-ouest. La station est directement arrosée par les aérosols marins lors de vent orientés sud-ouest. On sélectionne une série de mesures datée du 20 mai 2003 lors d'un vent moyen d'ouest. Il n'est pas possible d'effectuer des simulations avec HYSPLIT pour cette année-là



Latitude	Longitude	Elévation (m)	Distance station-mer (km)
39.910	8.5	10	0
Vent (m.s-1)	Direction (°)	Fetch (km)	Humidité Relative
12	270	600	

Tableau 6-8 : Oristano

Messina

La station de Messina se situe sur la pointe nord-est de la Sicile, au niveau du détroit de Messine. La station est protégée des aérosols marins sauf lors de vents en provenance du sud. On sélectionne une série de mesures lors de vent moyen en provenance du sud, le 22 janvier 2007 à 12h.

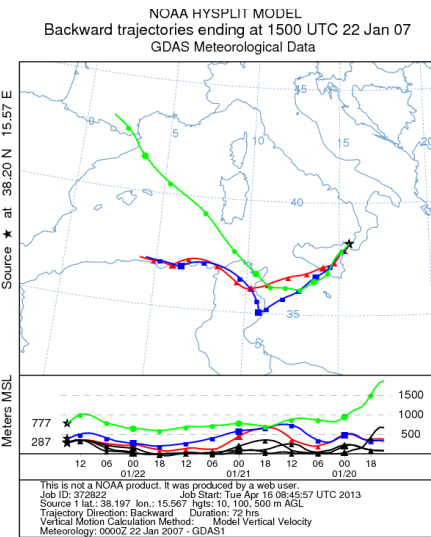


Figure 6-16 : Retro-trajectoire le 22/01/2007 à 12h à Messina

Latitude	Longitude	Elévation (m)	Distance station-mer
38.197	15.567	15	négligeable
Vent (m.s-1)	Direction (°)	Fetch (km)	Humidité Relative
6	180	600	78%

Tableau 6-9 : Messina

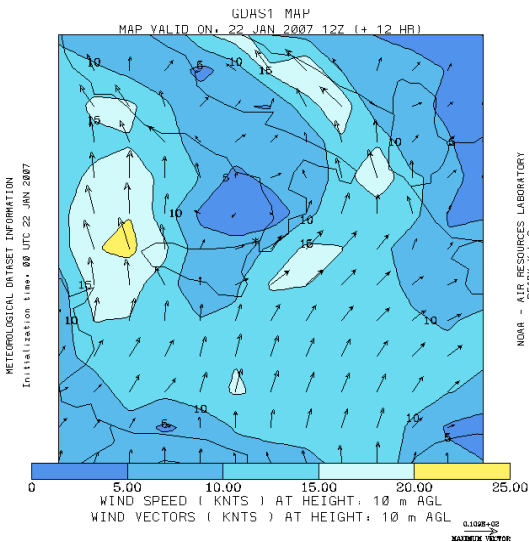


Figure 6-17 : Carte des vents le 22/01/2007 à 12h à Messina



### Porquerolles

On sélectionne deux séries de mesures sur la station de Porquerolles, décrite dans la section 3.3.1 : les 12 et 15 juillet 2012 à 16h, qui correspondent à des conditions de vent d'ouest faible et moyen, respectivement.

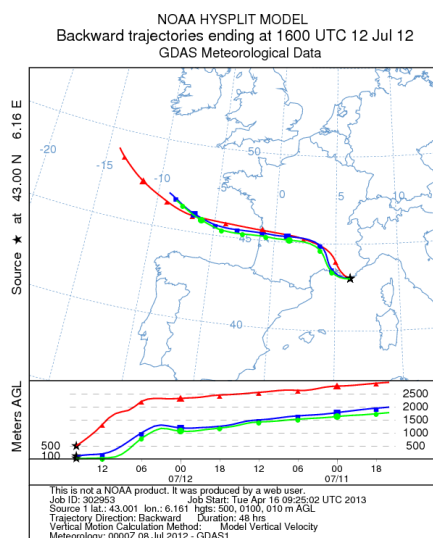
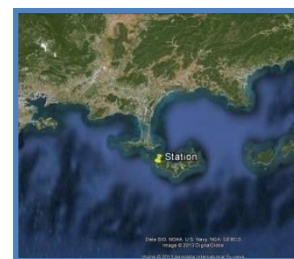


Figure 6-18 : Retro-trajectoire le 12/07/2012 à 16h à Porquerolles

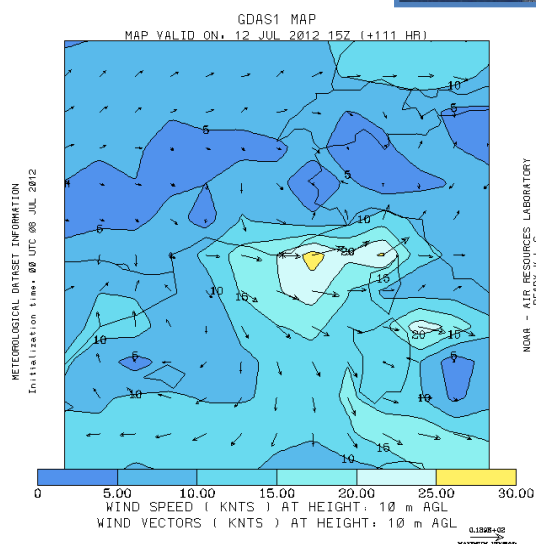


Figure 6-19 : Carte des vents le 12/07/2012 à 16h à Porquerolles

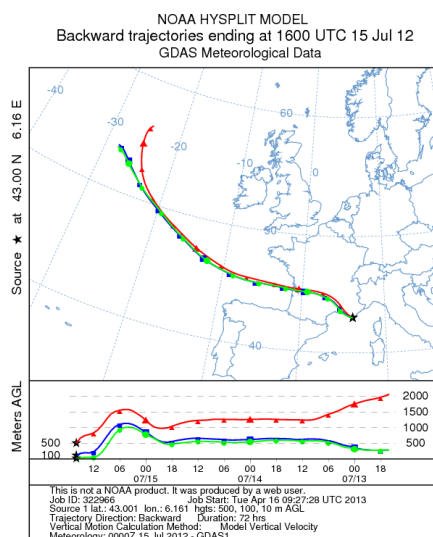


Figure 6-20 : Retro-trajectoire le 15/07/2012 à 16h à Porquerolles

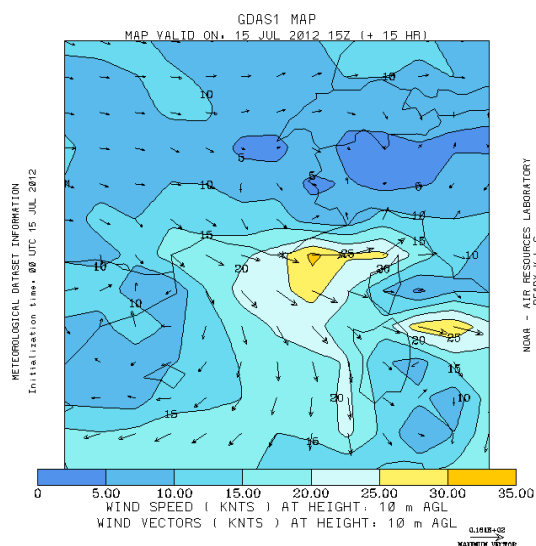


Figure 6-21 : Carte des vents le 15/07/2012 à 16h à Porquerolles

Latitude	Longitude	Elévation (m)	Distance station-mer
43.001	6.161	22	négligeable
Vent (m.s-1)		Direction (°)	Fetch (km)
Le 12/07/2012 : 5	Le 15/07/2012 : 8	280	250

Tableau 6-10 : Porquerolles

## Le Frioul

La station du Frioul se situe au large de Marseille dans l'archipel du Frioul. La station est arrosée en aérosols marins lors de vents orientés d'ouest à sud est et par Mistral (nord) malgré un fetch court. On sélectionne une série de mesures au Frioul effectuée le 13 novembre 2010 à 16h lors d'un vent moyen en provenance du sud-ouest.

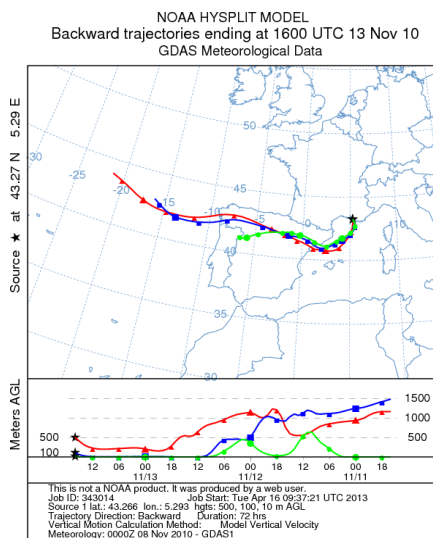


Figure 6-22 : Retro-trajectoire le 13/11/2010 à 16h au Frioul

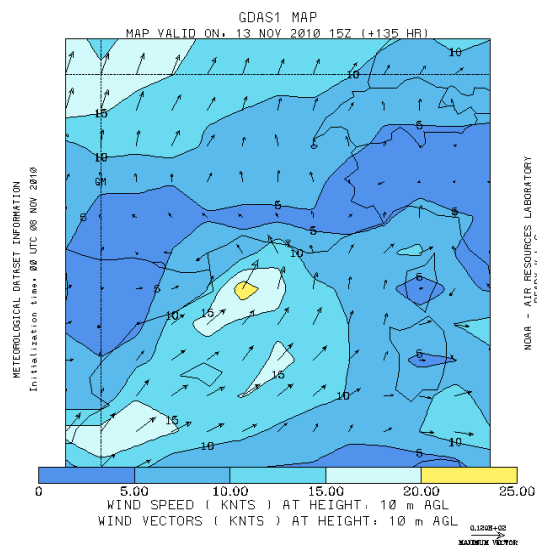


Figure 6-23 : Carte des vents le 13/11/2010 à 16h au Frioul

Latitude	Longitude	Elévation (m)	Distance station-mer
43.266	5.293	40	négligeable
Vent (m.s-1)	Direction (°)	Fetch (km)	
6	180	600	

Tableau 6-11 : Frioul

## b. Evaluation du profil vertical avec MACMod

Nous effectuons des simulations avec MACMod dans des conditions semblables aux conditions de mesures pour les différentes stations. Le modèle utilise la fonction source de Demoisson et al. (2013). Le pas de temps est déterminé automatiquement (cf. section 4.2.5). La grille est étirée sur 31 niveaux verticaux de 0.45 m à 1000 m. Le nombre de mailles et le pas d'espace suivant l'horizontale varie suivant les stations (Tableau 6-12). La grille de calculs du modèle (Figure 6-24) est définie suivant : la distance de mer parcourue par le vent, la vitesse du vent et la distance de la station par rapport à la mer si elle est supérieure à la taille d'une maille. Nous négligerons alors les effets de la température, la vitesse verticale du vent et la hauteur des vagues.

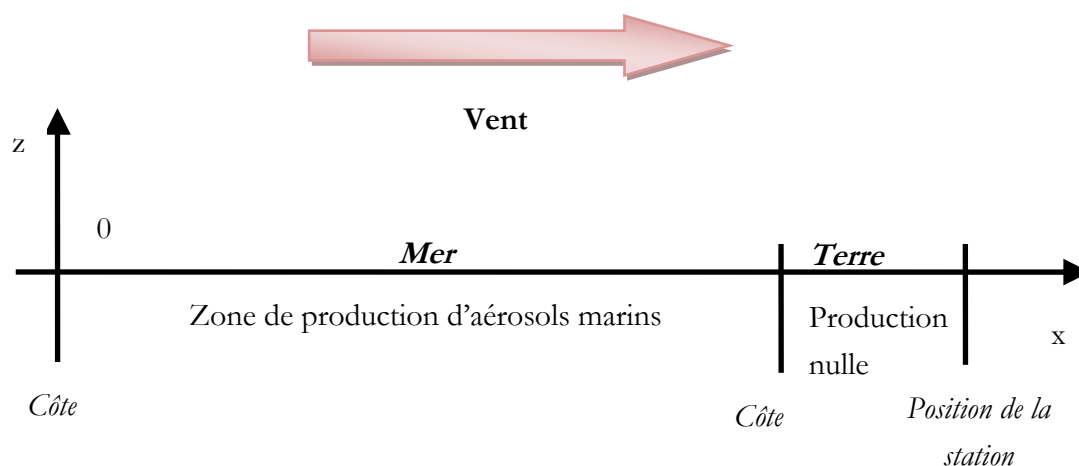


Figure 6-24 : Analogie entre la grille du modèle et le site de mesures

Station	Nombre de mailles horizontales	Pas d'espace horizontal (m)	Position de la bande de terre (flux de production d'aérosols marins nul)
Palma	200	1000	De la maille horizontale 180 à la maille 200
Lampedusa	400	2500	x
Ersa (X=150 km)	150	1000	x
Ersa (X=500 km)	250	2000	x
Oristano	300	2000	x
Messina	300	2000	x
Porquerolles	180	1000	x
Le Frioul	300	2000	x

Tableau 6-12 : Définition de la grille du modèle

Pour chaque simulation, nous extrayons le profil vertical de concentration calculée par le modèle (position  $x$  sur la Figure 6-24). Les profils sont transformés en distribution volumique ( $dV/d\ln r$ ) puis intégrés suivant la verticale pour pouvoir être comparés aux données d'AERONET.

### c. Comparaisons Simulations-Mesures

Pour chaque mesure nous déterminons le rapport entre les concentrations volumiques intégrées sur la verticale mesurées par AERONET et celles modélisées, pour des particules de 0.1, 0.5, 1, 5 et 10  $\mu\text{m}$  (Tableau 6-13). La source probable des aérosols (anthropique, marin, continental ou



désertique) est déterminée à partir du coefficient d'Angström et de l'épaisseur optique fournis par AERONET (Tableau 6-13). Le Tableau 6-13 regroupe les ratios de concentration, coefficient d'Angström et de l'épaisseur optique ainsi que le vent, le fetch, la hauteur de mesure.

Station	Vent (ms)	Fetch (km)	Alt. (m)	AOD	Alpha	Origine	Rayon (µm)				
							0.1	0.5	1	5	10
Palma	7	220	10	0.10	0.25	marin	1.94	0.07	0.07	0.60	2.06
Lamp. 1	14	1000	45	0.50	0.23	désertique	0.83	4.77	4.39	0.39	0.10
Lamp. 2	12	1000	45	0.40	0.36	désertique	0.92	2.92	5.92	0.37	0.11
Lamp. 3	9	500	45	0.08	0.85	marin+anthropique ou continental	1.46	1.62	3.22	0.66	0.32
Orist.	12	600	10	0.10	1.10	marin+anthropique ou continental	0.94	1.76	1.39	0.17	0.04
Ersa 1	5	150	80	0.08	0.25	marin	14.99	14.93	3.00	1.07	0.57
Ersa 2	7	500	80	0.10	0.07	marin	1.17	4.81	7.61	3.57	2.48
Porq. 1	5	200	22	0.04	0.20	marin	1.02	3.74	5.48	3.02	2.62
Porq. 2	8	200	22	0.05	0.60	marin+anthropique ou continental	3.76	13.40	2.46	0.45	0.76
Frioul	6	600	40	-	-	marin <sup>3</sup>	0.58	1.37	1.01	0.22	0.38
Messine	6	600	15	-	-	désertique + marin <sup>4</sup>	1.75	3.80	3.74	0.83	0.75
Moyenne							2.67	4.84	3.48	1.03	0.93

Tableau 6-13 : Ratio des concentrations (AERONET/MACMod)

Dans l'ensemble, les résultats sont corrects puisque 53 % des valeurs sont inférieures à un rapport de 3 et 73 % à un rapport de 5 (le rapport est inversé lorsqu'il est inférieur à 1).

Les Figure 6-25a et Figure 6-25b présentent les boîtes à moustache des rapports de concentration volumiques intégrées sur la verticale en fonction de la taille des particules et des stations de mesures, respectivement. Les boîtes à moustaches sont des représentations statistiques de séries de données, où le rectangle rouge, les extremums du rectangle noir, les cercles rouges et le symbole plus correspondent, respectivement, à la médiane, le premier et

<sup>3</sup> Déterminé à partir des rétro-trajectoires, pas de mesures de photomètre disponible.

<sup>4</sup> Déterminé à partir des rétro-trajectoires, pas de mesures de photomètre disponible.

troisième quartile, les minima et maxima et la moyenne de la chaque série de donnée. Les valeurs des rapports inférieurs à 1 sont inversées. Les résultats sont très variables suivant les stations et les tailles de particules. En effet, suivant la position géographique de la station, l'apport en particules d'aérosols autres que marins sont fréquents, comme par exemple, la station de Lampedusa qui est régulièrement empoussiérée de particules désertiques. On peut constater que le modèle et les données d'AERONET sont très proches pour les particules de 5  $\mu\text{m}$ . Ces particules sont majoritairement marines en l'absence d'épisode saharien. Cependant, cette taille de particules correspond au rayon modal grossier utilisé dans le modèle d'inversion d'AERONET pour déterminer la distribution volumique des particules. Ceci peut expliquer en partie les résultats moins bons pour les autres tailles de particules.

Parmi les différentes stations, les résultats sont les plus corrects (ratio le plus près de 1) pour Messine et Le Frioul. Il est possible que la position et la conformation de la station ne soient pas uniquement à l'origine de ces résultats. De la Figure 6-25c à la Figure 6-25f, on représente les boîtes à moustache du rapport en fonction de l'altitude du photomètre, du fetch, de la vitesse du vent et du type de particules. La contribution marine est d'autant plus importante lorsque le fetch augmente, d'où de meilleurs résultats pour les très longs fetches sur la Figure 6-25d. La production marine est également plus efficace lors de vent fort. Cependant, lorsque les masses d'air survolent les régions désertiques, des particules désertiques sont mises en suspension dans l'atmosphère. Lorsque ces masses d'air survolent les zones urbaines ou continentales, les vents forts ont généralement tendance à disperser les polluants. C'est pourquoi, on observe des rapports plus élevés lorsque le vent augmente (cf. Figure 6-25e). Le type de particules est déterminé à partir de l'épaisseur optique et du coefficient d'Angström. Il est possible qu'en présence de particules désertiques, la contribution marine ne soit pas visible. En effet, à Lampedusa, on en a déduit que les particules étaient désertiques. Cependant, le fetch étant de plusieurs centaines de kilomètres, il y a certainement une contribution marine. Or le type de particules ne semble pas pris en compte (cf. Figure 6-25f), sur Lampedusa, les valeurs des distributions volumiques d'AERONET et du modèle sont très semblables. L'altitude de la station de mesures peut être également à l'origine d'erreurs car le relief n'est pas pris en compte dans MACMod. Les phénomènes d'ascension ou d'impaction de particules sur une falaise, par exemple, ne sont donc pas pris en compte et peuvent modifier le transport vertical des aérosols, notamment pour les grosses particules.

#### **d. Récapitulatif**

Dans l'ensemble, les distributions volumiques mesurées par AERONET et les simulations effectuées par MACMod sont du même ordre de grandeur, d'un facteur inférieur à 5 dans 73% des cas. Nous pouvons supposer que la quantité totale des aérosols marins dans la colonne d'air calculée par MACMod est relativement correcte. Cependant, ces résultats sont à prendre avec précaution car les distributions d'AERONET sont déterminées à partir d'un modèle d'inversion bimodal basé sur les mesures de l'épaisseur optique et du coefficient d'Angström. Ces

distributions ne sont donc pas des mesures directes. De plus, la distribution est intégrée sur toute la colonne d'air, il est probable que les aérosols hors de la couche limite soient pris en compte, ce qui n'est pas le cas des simulations.

Au niveau de la modélisation, on ne prend pas en compte l'humidité des particules qui varie suivant l'altitude, on suppose le vent constant le long du fetch et les effets bathymétriques sur le déferlement ne sont pas pris en compte. Ces approximations peuvent affecter la qualité des simulations.

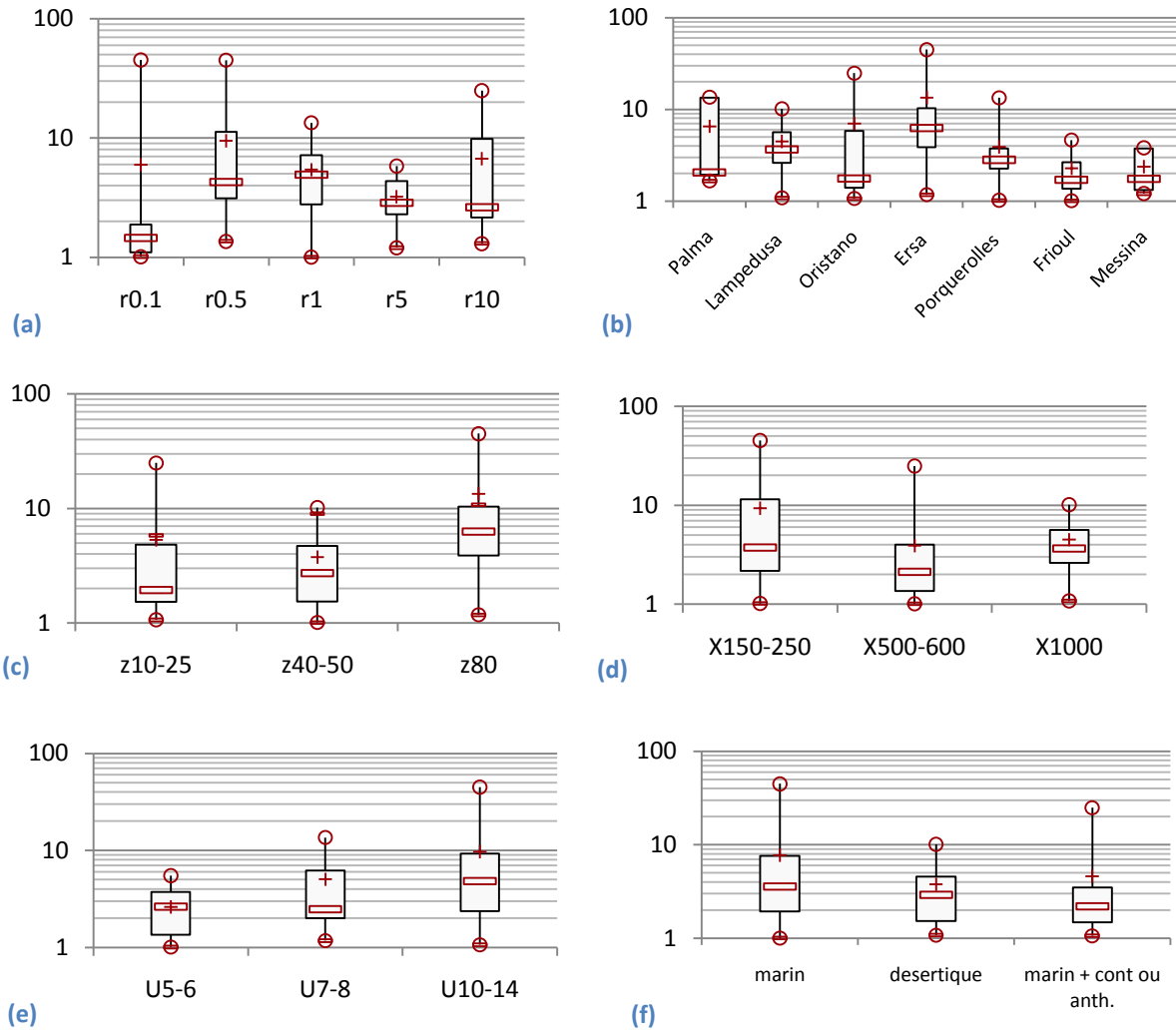


Figure 6-25 : Boîte à moustache du facteur d'écart entre les mesures (AERONET) et les simulations (MACMod) par rapport à la taille des particules (a), à la station (b), à l'altitude des stations (c), au fetch (d), au vent (e) et au type de particules (f).

## 6.5 Synthèse

Le choix de la fonction source dans un modèle de transport d'aérosols marins est essentiel pour estimer la concentration en particules. Avec la fonction source de Monahan et al. (1986), le facteur de confiance entre les sorties du modèle et les concentrations mesurées lors de MIRAMER est de l'ordre de 10. Nous avons cherché à réduire ce facteur de confiance en établissant une nouvelle fonction source propre à la zone côtière méditerranéenne qui dérive de la fonction source de Monahan et al. (1986). La fraction de couverture moutonneuse et le nombre de particules produites par unité de whitecap ont été redéfinis. La modification de la formulation de la fraction de couverture moutonneuse consistait à introduire l'âge des vagues afin de prendre en compte l'état de mer et le vent. Le terme  $\frac{dE}{dr}$  a été modifié de façon à séparer la production des gouttes de jet et des gouttes de film et de prendre en compte le pic d'accumulation des particules fines. Les coefficients de la nouvelle fonction source ont été calculés grâce à trois simulations pour des conditions de vent et de mer correspondant à trois séries de mesures différentes.

Dans un premier temps, nous avons validé le modèle dans la CLS (à 10 m d'altitude), en comparant les concentrations calculées par le modèle à des mesures (MIRAMER) pour six autres conditions de mer et de vent. Le facteur de confiance (68%) déterminé pour chaque taille de particules et pour chaque condition de mesures est inférieur à 3 ce qui correspond à la fiabilité des mesures (De Leeuw 1986), dans la gamme de taille de 0.5-5  $\mu\text{m}$ . La fonction source est donc valide pour des vitesses de vent allant de faible à fort et des fetches variant d'une vingtaine à plusieurs centaines de kilomètres.

Dans un second temps, on a validé la répartition verticale de la concentration en aérosols calculée par MACMod. Les sorties du modèles ont été comparées aux distributions volumiques intégrées sur la verticale fournies par AERONET pour 7 stations de mesures en Méditerranée. Dans l'ensemble, le facteur de confiance est inférieur à 5. MACMod semble estimer correctement le nombre de particules dans la colonne d'air malgré le fait qu'il ne prend en compte que les aérosols dans la CLAM.

Nous pouvons conclure que la nouvelle fonction est fiable pour l'estimation de la concentration en particules comprises entre 0.5 et 5  $\mu\text{m}$ , quelque soit la vitesse du vent et pour des fetches moyens à infinis. Cependant, les mesures utilisées n'ont pas été analysées chimiquement. Il est donc possible que les particules mesurées ne soient pas en totalité d'origine marine. De plus, dans le cadre de la modélisation de la qualité de l'air, il est nécessaire de prendre en compte différentes sources de particules (anthropique, terrigène). Le modèle doit donc être initialisé avec des profils verticaux de concentrations en particules spécifiques à leur source.

# Chapitre 7. Sources de l'aérosol côtier

## 7.1 Introduction

La fonction source a été établie à l'aide des mesures de la campagne MIRAMER. Cependant, les aérosols n'ont pas été analysés chimiquement. Il est possible que MACMod prennent en compte des particules de source autre que marine.

Durant la campagne de mesures Porquerolles 2007, des analyses chimiques ont été effectuées sur des échantillons d'aérosols pour trois conditions météorologiques. Dans ce chapitre, nous aborderons cette campagne sous un angle différent des précédentes études (Piazzola et al. 2012; Blot 2009). Nous nous intéresserons à la quantification de la composante marine dans les échantillons d'aérosols en fonction de l'origine des masses d'air, mais également à l'aspect local ou synoptique de la production en particules issues de l'interaction vent-vagues. Nous évaluerons le taux de déchloronisation des échantillons d'aérosols témoin du vieillissement de la population (*cf.* 2.3.2c). Ces connaissances nous permettront d'évaluer les sources de particules prises en compte dans MACMod avec la nouvelle fonction source. Puis, dans le cadre de la modélisation de la qualité de l'air, nous étudierons les profils d'initialisation de la concentration en particules de différentes sources à mettre en place dans MACMod.

## 7.2 Caractérisation chimique des aérosols sur l'île de Porquerolles

La campagne de mesures Porquerolles 2007 s'est déroulée du 3 au 29 mai 2007 à la station de mesures de Porquerolles. Du 23 au 28 mai, des échantillons d'aérosols de diamètre aérodynamique 0.03-9.97  $\mu\text{m}$  ont été prélevés puis analysés par le laboratoire de Météorologie Physique de l'université Pascal Blaise à Clermont-Ferrand afin d'en déduire la concentration massique de différents composés chimiques traceurs des différentes sources d'aérosols (marin, anthropique ou terrigène). Durant cette période de mesures, différentes conditions météorologiques se sont succédées : vent « côtier » et faible, fort Mistral et vent « marin ».

## 7.2.1 Conditions expérimentales

### a. Vent côtier

La rose des vents (Figure 7-1) représente les conditions de vent côtier du 22 au 24 mai 2007. On constate une vitesse de vent faible, n'excédant pas  $6 \text{ m.s}^{-1}$  durant la période de mesures. Les masses d'air sont d'origine continentale (Figure 7-2).

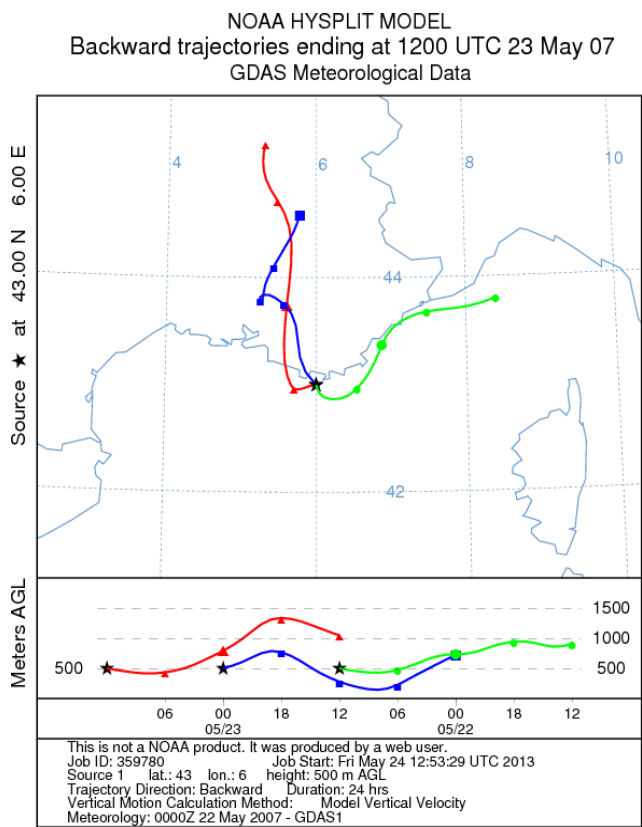
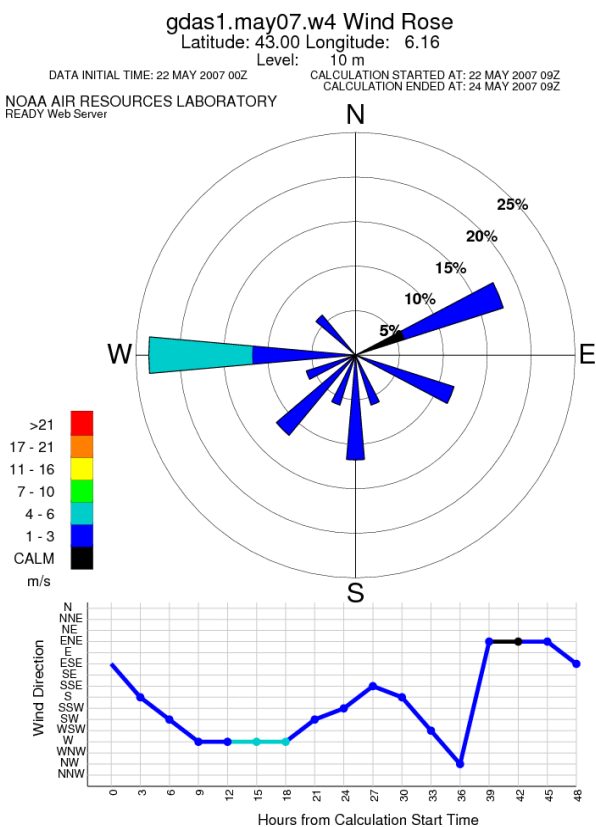


Figure 7-1 : Rose des vents durant un épisode de vent côtier à Porquerolles (HYSPLIT)

Figure 7-2 : Rétrotrajectoire durant un épisode de vent côtier à Porquerolles (HYSPLIT)

## b. Mistral

La deuxième condition de vent correspond à un fort épisode de Mistral se déroulant du 29 au 30 mai 2007. Le vent est orienté nord-ouest à la station et atteint une vitesse de  $20 \text{ m.s}^{-1}$  (Figure 7-3). Les masses d'air traversent la France avant de parcourir une longueur de mer de l'ordre d'une vingtaine de kilomètres (Figure 7-4).

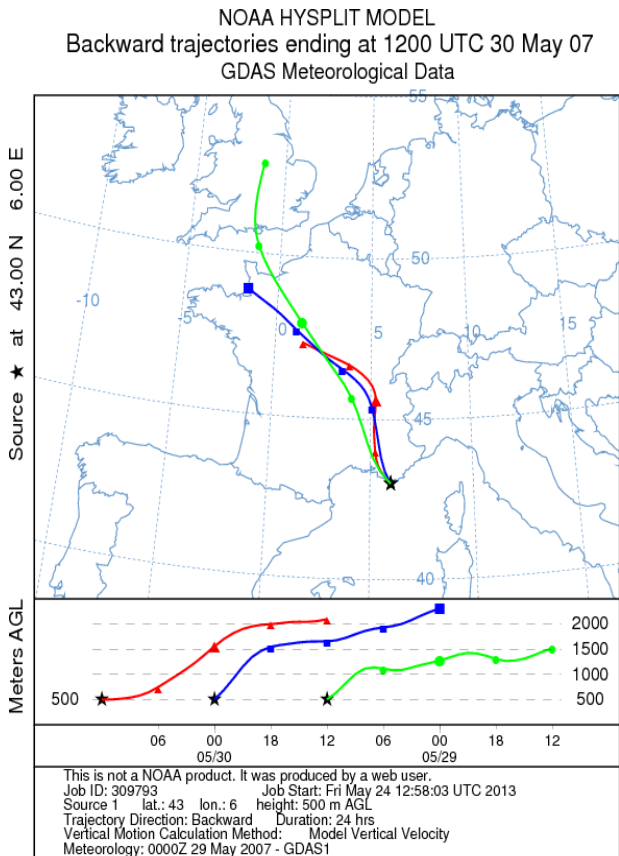
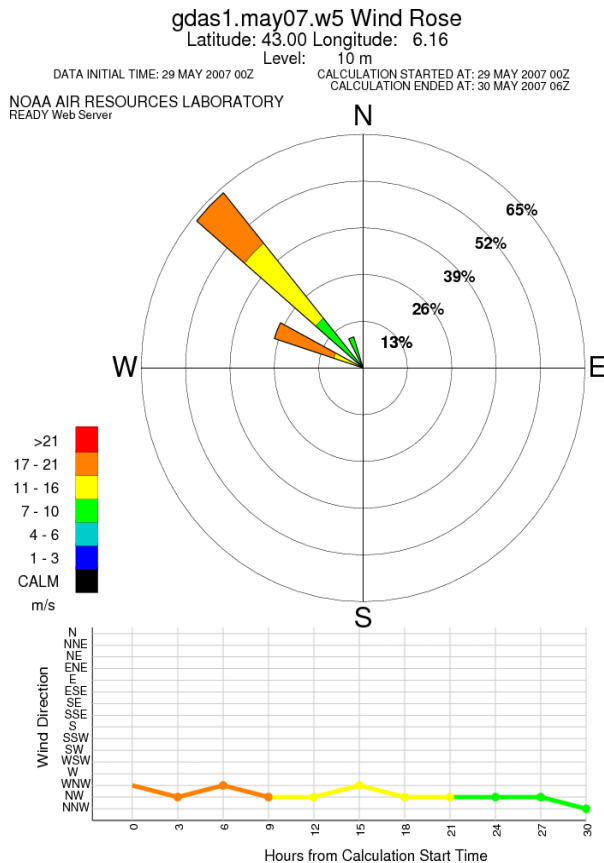


Figure 7-3 : Rose des vents durant un épisode de Mistral à Porquerolles (HYSPLIT)

Figure 7-4 : Rétrotrajectoire durant un épisode de Mistral à Porquerolles (HYSPLIT)

## c. Conditions méditerranéenne

Le troisième cas étudié correspond à des conditions méditerranéennes se déroulant du 25 au 27 mai 2007. La direction du vent est variable mais correspond à des fetches infinis (Figure 7-5). La vitesse du vent est faible avec des épisodes atteignant  $10 \text{ m.s}^{-1}$ . Les masses d'air survolent la Méditerranée en longeant l'Italie ou l'Espagne (Figure 7-6).

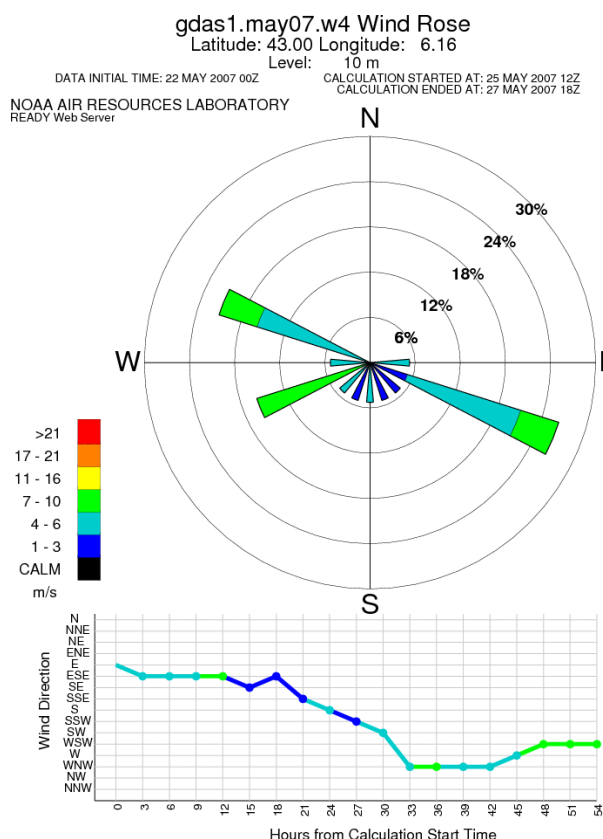


Figure 7-5 : Rose des vents durant un épisode de Mistral à Porquerolles (HYSPLIT)

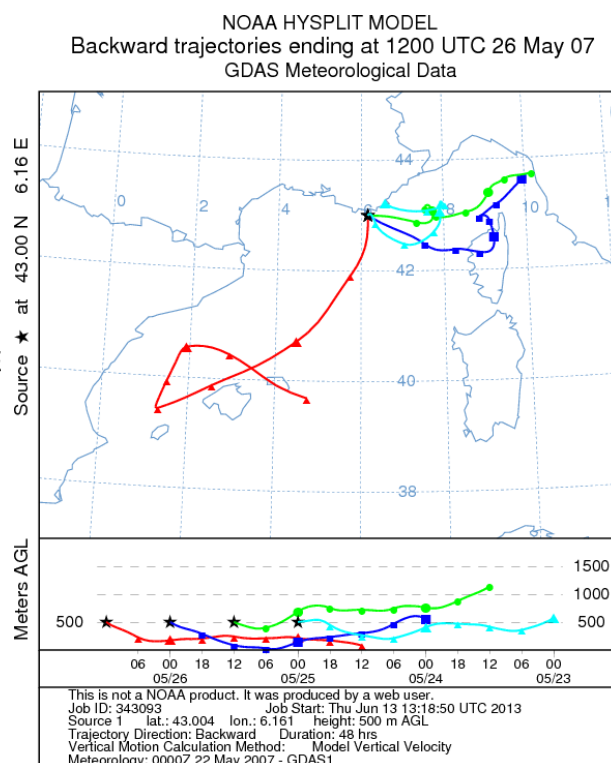


Figure 7-6 : Rétrotrajectoire durant un épisode de Mistral à Porquerolles (HYSPLIT)

## 7.2.2 Caractérisation Chimique des aérosols marins

La composition chimique des aérosols est caractéristique de leur source de production et des transformations qu'ils ont pu subir au cours de leur transport, par réaction chimique ou absorption d'autres composés. Les analyses des échantillons d'aérosols mesurés durant la campagne Porquerolles 2007 ont permis d'évaluer les concentrations massiques des éléments suivants : OC, EC,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ox}^{2-}$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^{2-}$ , Cl,  $\text{NH}_4^+$  et des éléments non identifiés (résidus) qui représentent environ 50% de la masse totale.

Le chlore (Cl) et le sodium ( $\text{Na}^+$ ) sont témoins d'une source marine. Le carbone élémentaire (EC) est majoritairement d'origine anthropique et issu de combustion. Le potassium ( $\text{K}^+$ ), le calcium ( $\text{Ca}^{2+}$ ) et le magnésium ( $\text{Mg}^{2+}$ ) sont principalement d'origine terrigène, cependant l'eau de mer en contient une quantité faible. De même, le carbone organique (OC), les nitrates ( $\text{NO}_3^{2-}$ ) et les sulfates ( $\text{SO}_4^{2-}$ ) peuvent avoir différentes origines. Les ions oxalates ( $\text{Ox}^{2-}$ ) sont généralement témoins de la décomposition de matière organique. Quant à l'ammonium ( $\text{NH}_4^+$ ), il est d'origine anthropique.

La proportion des différents composés des aérosols de source marine est identique à celle de l'eau de mer à leur formation. La concentration massique en sodium ne varie pas au cours du



temps en raison de sa faible réactivité avec les autres composés de l'atmosphère. Le sodium permet alors de déduire la proportion initiale de l'ensemble des composés des aérosols d'origine marine (Sellegri et al. 2001) et donc d'en déduire le taux de déchloration.

### a. Vent côtier

Dans un premier temps, on évalue la contribution en masse (%) de chaque composé pour chaque classe de taille des échantillons, dans le cas de vent faible et côtier. La Figure 7-7 représente la contribution en masse de chaque composé analysé et la masse totale des échantillons en fonction du diamètre aérodynamique des particules. On observe un mode à 0.3  $\mu\text{m}$ , composé essentiellement de carbone organique, de sulfate et d'ammonium. Ces composés ayant des sources multiples et la teneur en sodium et chlore étant faible, nous supposons l'origine de ces particules essentiellement anthropiques. On observe également un mode vers 2.5  $\mu\text{m}$ , composé principalement de chlore, de sodium, de nitrate et de carbone organique. La fraction de sels marins représente environ 26 % de la masse totale dans le mode grossier et moins de 1 % dans le mode fin. Nous observons donc une contribution marine relativement faible dans cette gamme d'échantillon.

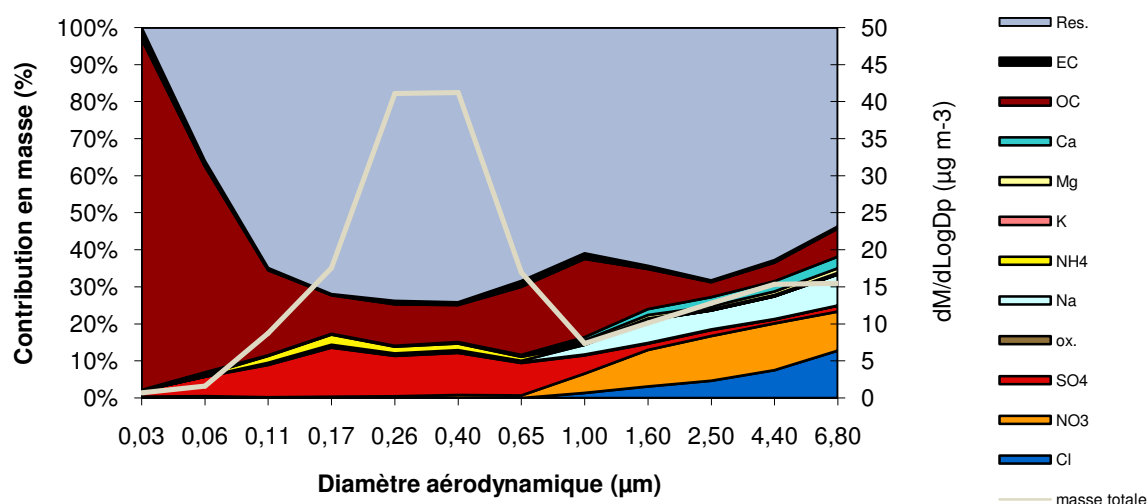


Figure 7-7 : Pourcentage de contribution en masse des différents composés analysés et des résidus et masse totale de l'échantillon en fonction du diamètre aérodynamique dans le cas des masses d'air côtières.

La Figure 7-8 présente la concentration massique, les fractions fine et grossière de chaque composé. La contribution en sodium est essentiellement dans la fraction grossière ( $\approx 90\%$ ). La fraction de chlore est de 100 % dans le mode grossier. Cependant, on estime qu'environ 37% du chlore a disparu. Le processus de déchloration est dû à une réaction entre les ions chlorure et les ions nitrates et/ou sulfates adsorbés (ou absorbés) par les aérosols (*cf.* section 2.3.2). Il illustre une accalmie et une population en aérosols marins âgée. La déchloration explique en partie la présence des nitrates et sulfates qui peuvent être issus de différentes sources. A partir des coefficients de proportionnalité, on peut en déduire que la fraction grossière de sulfate est

essentiellement d'origine marine et moins de 1 % pour la fraction fine. Ainsi, les nitrates et sulfates sont également témoins d'une activité anthropique et confirmé par la présence de carbone élémentaire, environ 3% de la masse totale et par la présence d'ammonium. D'autre part, la fraction en calcium est 15 fois plus élevée que dans l'eau de mer, on peut supposer une composante terrigène.

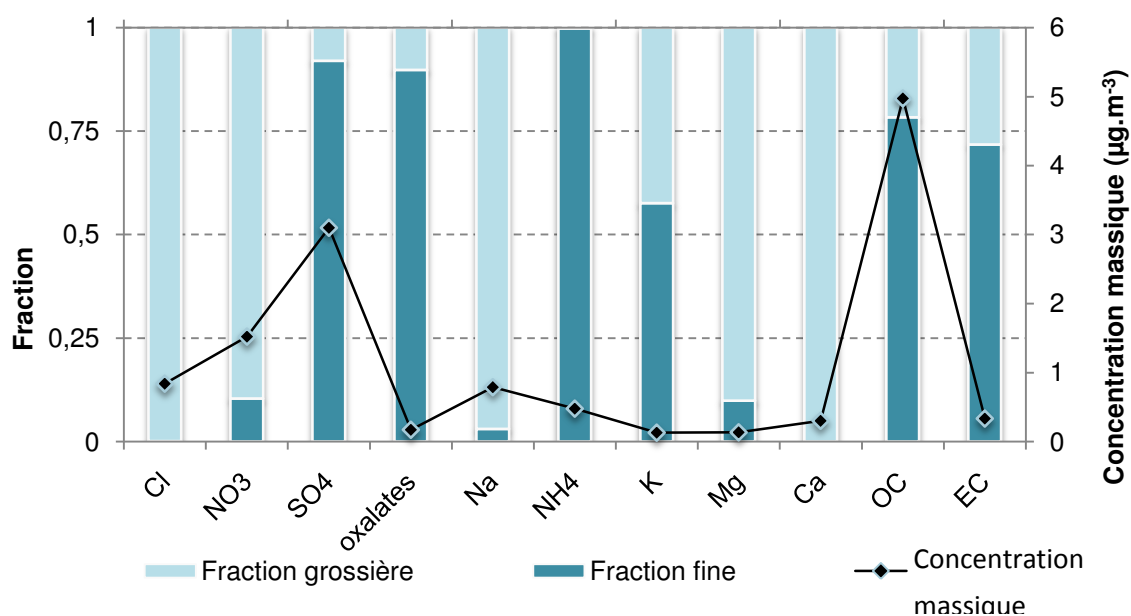


Figure 7-8 : Fractions fine et grossière et concentration massique de chaque composé pour les masses d'air d'origine côtière.

Lors de vent faible, la production marine est peu efficace. Les masses d'air se chargent en particules originaires de la zone urbanisée toulonnaise. La part en particules anthropiques et continentales est alors importante devant la source marine. Les particules marines âgées sont probablement peu générées localement et sont le résultat d'un bruit de fond marin.

## b. Mistral

On étudie le cas d'un épisode de fort Mistral ( $U \geq 15 \text{ m.s}^{-1}$ ), parcourant 25 km au dessus de la mer. La Figure 7-9 illustre la fraction en masse de chaque composé en fonction du diamètre aérodynamique des particules. Le mode accumulation est très peu marqué devant le mode grossier (environ  $6 \mu\text{m}$ ) qui est majoritairement constitué de chlore et de sodium. En effet, les sels marins ( $\text{NaCl}$ ,  $\text{MgCl}_2$ , *etc.*) représentent 23% et 49% de la masse dans les fractions fine et grossière, respectivement. Le fort vent disperse les particules fines et engendre des aérosols marins.

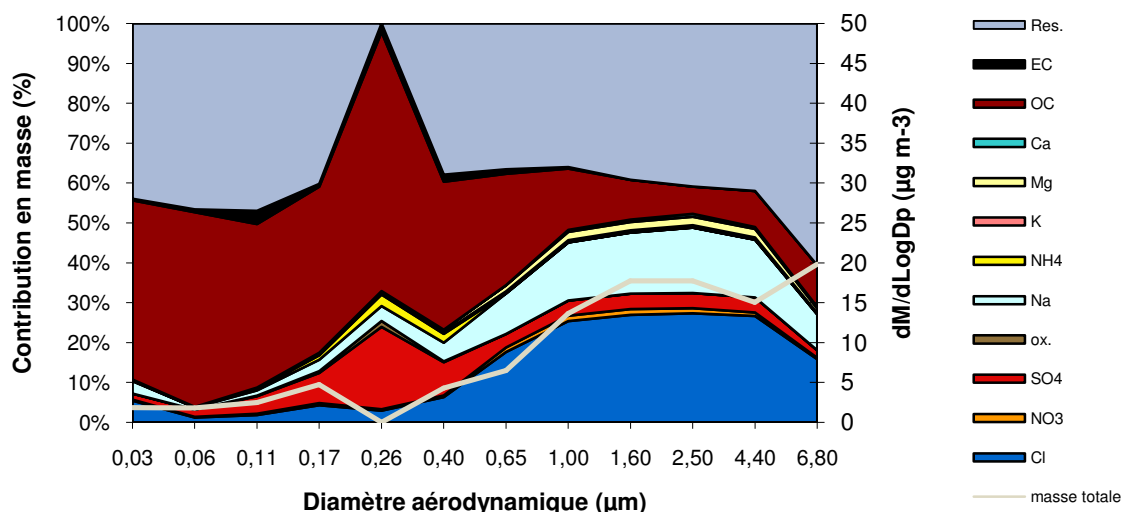


Figure 7-9 : Pourcentage de contribution en masse des différents composés analysés en fonction du diamètre aérodynamique des échantillons dans le cas de Mistral

La Figure 7-10 représente les fractions fine et grossière de chaque composé ainsi que la concentration massique totale. La concentration en sodium est 5 fois plus élevée que dans le cas côtier. La proportion de chlore, de calcium, de magnésium, des sulfates et du potassium par rapport au sodium est similaire à celle de l'eau de mer. Les aérosols marins semblent fraîchement formés car la déchloronisation n'apparaît pas. Ceci peut également expliquer les concentrations en nitrate et en sulfate moins élevées que dans le cas des masses d'air côtières. De plus, on constate une diminution du carbone élémentaire (facteur 3) par rapport au cas côtier et le calcium est majoritairement d'origine marine. Les aérosols d'origine anthropique et continentale sont fortement dispersés par le vent. La concentration massique en carbone organique est identique pour les deux épisodes, leur dispersion est compensée par une production marine.

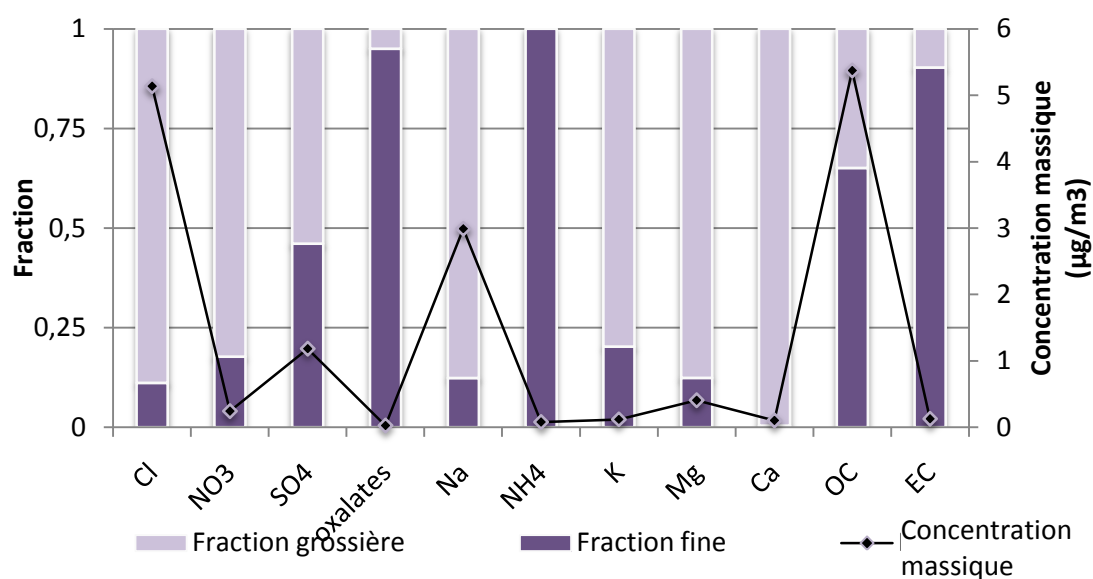


Figure 7-10 : Fractions fine et grossière et concentration massique de chaque composé dans le cas de Mistral

Dans le cas d'un fort vent, la production marine d'aérosols est importante malgré un fetch relativement court. Les particules continentales et anthropiques semblent bien dispersées et la production marine est locale.

### c. Conditions Méditerranéennes

Les conditions méditerranéennes sont caractéristiques de fetches longs et de vent moyen. La Figure 7-11 présente le pourcentage de contribution en masse de chaque composé en fonction du diamètre aérodynamique. On observe un mode grossier à environ  $3\text{ }\mu\text{m}$  bien marqué ( $30\text{ }\mu\text{g.m}^{-3}$ ) et une mode d'accumulation à environ  $0.3\text{ }\mu\text{m}$ , également bien marqué ( $454\text{ }\mu\text{g.m}^{-3}$ ). Moins de 1% des aérosols sont des sels dans la fraction fine, et environ 26% dans la fraction grossière. La concentration en masse dans le mode grossier semble être plus importante lors de cet épisode. Par contre, dans le mode d'accumulation la concentration massique est très proche du cas côtier.

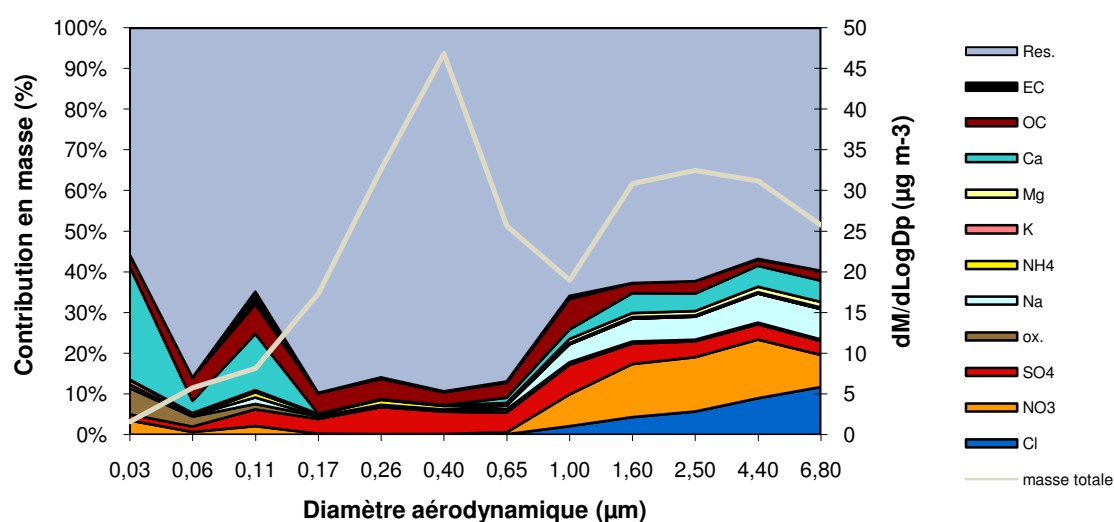


Figure 7-11 : Pourcentage de contribution en masse des différents composés analysés en fonction du diamètre aérodynamique des échantillons de masses d'air en provenance de la Méditerranée

La Figure 7-12 présente les fractions fine et grossière ainsi que la concentration en masse de chaque composé. La concentration massique en sodium est 3 fois plus importante que dans le cas côtier. La fraction fine de chlore est quasiment nulle. Lorsque l'on évalue la concentration en masse du chlore par rapport au sodium, suivant les coefficients de proportionnalité de ces éléments dans l'eau de mer, on constate qu'environ 43% du chlore a disparu. La déchloronisation est responsable de la fixation de sulfate et de nitrate dans les aérosols, ce qui explique en partie leur concentration relativement élevée. La déchloronisation est témoin d'une population d'aérosols marins âgée. De plus, les périodes d'accalmie favorisent ce phénomène. Les ions ammonium et le carbone élémentaire sont deux fois plus importants que dans les conditions côtières, ce qui laisse supposer une origine anthropique des particules. La proportion de calcium par rapport au sodium est nettement plus élevée que pour l'eau de mer, le calcium est alors minoritairement d'origine marine (facteur 25). De plus, les concentrations en calcium observées

sont élevés par rapport aux autres conditions (côtier facteur 6, mistral facteur 17). Les masses d'air en provenance du sud se chargent probablement en poussière désertique.

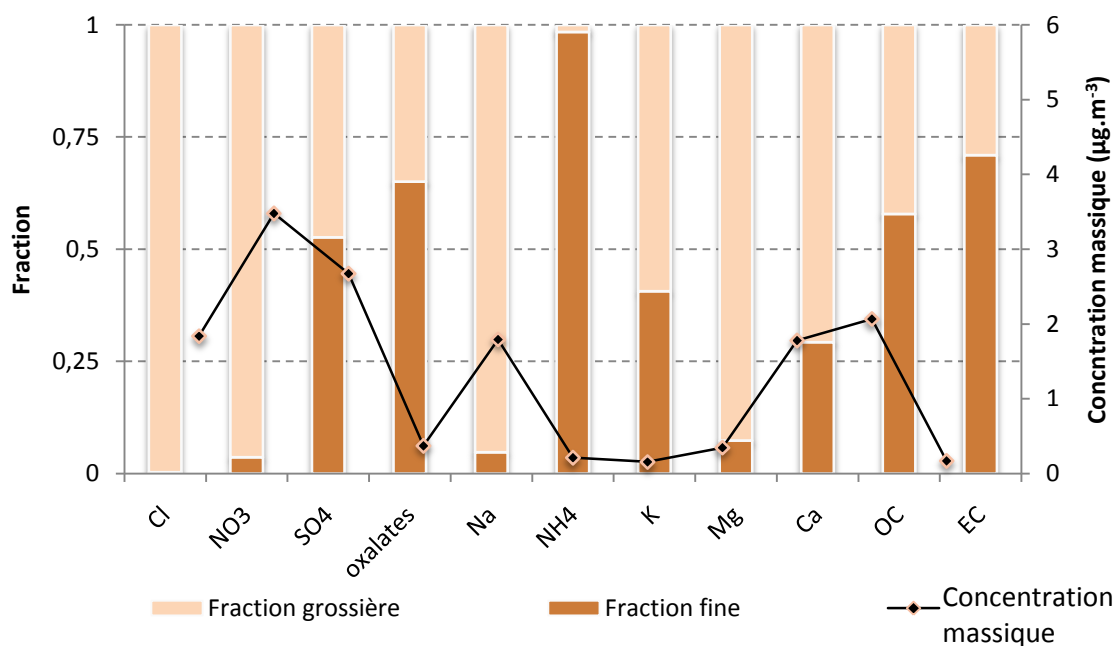


Figure 7-12 : Fractions fine et grossière et concentration massique de chaque composé dans des conditions Méditerranéennes

Lorsque les conditions sont méditerranéennes, les masses d'air parcourent la Méditerranée. Elles se chargent de particules continentales, probablement désertiques, en particules anthropiques au niveau du Golfe de Gênes, et en particules marines tout au long de leur parcours. La production marine est moyennement efficace en raison des vitesses de vent faibles à moyennes. Les particules marines restent relativement longtemps en suspension et sont probablement peu générées localement (taux de déchloronisation élevé).

### 7.2.3 Synthèse

Dans des conditions côtières, le vent est faible et les masses d'air survolent l'aire toulonnaise, fortement urbanisée. Les masses d'air se chargent fortement en particules anthropiques et continentales (jusqu'à  $40 \mu\text{g.m}^{-3}.\mu\text{m}^{-1}$ ) comparé aux conditions de mistral (moins de  $5 \mu\text{g.m}^{-3}.\mu\text{m}^{-1}$ ) dans le mode fin. Le vent étant faible, la production marine est peu efficace et les aérosols marins sont âgés au vu de la déchloronisation de 37 %.

Durant un épisode de fort Mistral, les masses d'air traversent la France, puis 25 km de mer avant de survoler la station de mesures. Les particules anthropiques et continentales sont fortement dispersées. Malgré un fetch court et en raison d'un fort vent ( $> 15 \text{ m.s}^{-1}$ ), la production marine est très efficace. La déchloronisation est quasiment nulle, les aérosols marins mesurés sont fraîchement formés.

Lorsque les masses d'air proviennent de la Méditerranée, le vent varie de faible à moyen. Les masses d'air parcourent la Méditerranée sur plusieurs centaines de kilomètres avant d'atteindre la station. Elles se chargent de particules anthropiques probablement dans le golfe de Gênes ou à Barcelone selon leur trajectoire. On a observé une concentration importante en calcium, témoin de particules d'origine désertiques. La production marine est moyennement efficace et les aérosols mesurés sont relativement âgés en raison du taux de déchloronisation d'environ 43%.

Cette étude a permis de mettre en évidence la fraction de particules marines plus ou moins importante selon l'origine des masses d'air. La composition en sels de mer des aérosols marins évolue au cours de leur transport (déchloronisation). Elle traduit le vieillissement de la population en aérosols marins ce qui permet de mettre en évidence le facteur d'échelle locale ou synoptique de la production marine. Cependant, ces résultats sont à prendre avec quelques réserves car pour chaque condition météorologique, les mesures se sont déroulées sur seulement deux jours. De plus, au mois de mai, le boom planctonique est généralement important, ce qui modifie les concentrations en nitrate de l'eau de mer.

### 7.3 Comparaison avec MACMod

Le modèle MACMod a pour objectif d'estimer la production et le transport des aérosols marins. Cependant, la fonction source a été déterminée à partir de mesures de concentration issues de l'ensemble des particules en suspension dans l'air (*cf.* Chapitre 6). Même si nous avons choisi des conditions typiquement marines lors de la mise en place de cette fonction source, il est probable que d'autres sources de particules aient été prises en compte. Nous cherchons donc à évaluer le type de particules que prend en compte le modèle quand on utilise notre fonction source.

Les aérosols présents dans l'atmosphère côtière sont généralement des aérosols continentaux et des aérosols marins. Ces derniers, issus de l'interaction vent vagues, sont des gouttelettes d'eau de mer constituées de sels de mer et des autres composés présents dans l'eau de mer, telle la matière organique.

Les mesures de la campagne Porquerolles 2007 permettent d'évaluer la distribution en masse des échantillons d'aérosols. De plus, à partir de l'analyse des concentrations de chaque composé de l'échantillon et notamment le sodium, nous pouvons en déduire la concentration totale en sels de mer de l'échantillon. Nous supposons le coefficient de proportionnalité entre le sodium et les différents composés des sels de mer équivalent dans l'eau et dans l'air.

Le modèle MACMod fournit des estimations de la distribution en taille fonction du rayon à 80% d'humidité des particules. Or les mesures acquises durant la campagne Porquerolles 2007 sont des distributions en masse fonction du diamètre sec, les échantillons ont été déshydratés avant

d'être pesé. Il est donc nécessaire de convertir les sorties de MACMod en distribution massique fonction du diamètre sec. Nous utilisons la formule de conversion suivante :

$$\frac{dM}{dD_d} = \frac{4}{3} \pi \rho_{part} \left( \frac{D_d}{2} \right)^3 \frac{dN}{dD_d} \quad (7-1)$$

Avec  $D_d \approx r_{80}$  (cf. section 2.3.2b), on suppose alors  $dN/dD_d \approx dN/dr_{80}$ .

Nous supposons la masse volumique des aérosols identique quelque soit la taille des particules. Or, la composition des aérosols varie suivant leur taille, ce qui peut conduire à des erreurs d'estimation de la concentration massique.

Nous effectuons des simulations pour les trois conditions de mesures de la campagne Porquerolles 2007, c'est-à-dire conditions côtières, Mistral et conditions méditerranéennes (Tableau 7-1). Les concentrations massiques en aérosols marins estimées par le modèle sont comparées aux concentrations massiques de sels marins et aux masses totales mesurées sur Porquerolles. La Figure 7-13 représente les concentrations en masse mesurées sur l'île et calculées par le modèle en fonction de la taille des particules pour les trois conditions de mesures.

Paramètres communs aux simulations			
Fonction source	Dépôt	Hauteur de la CLAM	Hauteur de la CLS
Demoisson et al. (2013)	Fairall et al. (1986)	1000 m	10 m
Nombre de mailles verticales	Pas d'espace vertical	Pas de temps	Initialisation avec un profil vertical
31	Mailles étirées	automatique	aucune
Vitesse verticale du vent	Zone de surf	Température air	ASTD
0	aucune	20 °C	0
Paramètres variables			
	Nombre de mailles horizontales	Pas d'espace horizontal	Vitesse horizontale du vent
Cas côtier	100	2500 m	4 m.s <sup>-1</sup> (Paramétrique, profil log)
Cas Mistral	100	250 m	20 m.s <sup>-1</sup> (Paramétrique, profil log)
Conditions Méditerranéennes	100	2500	5.5 m.s <sup>-1</sup> (Paramétrique, profil log)

Tableau 7-1 Paramètres de simulation

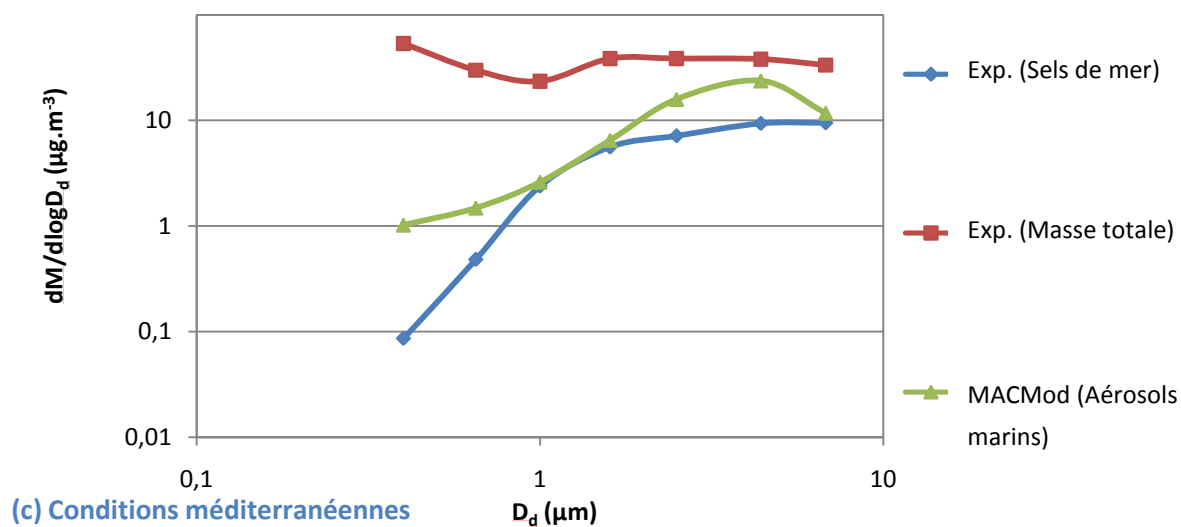
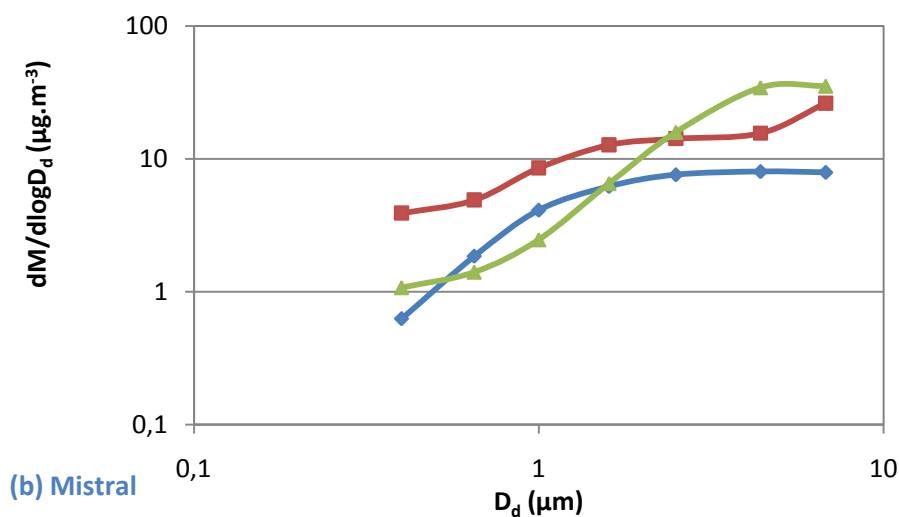
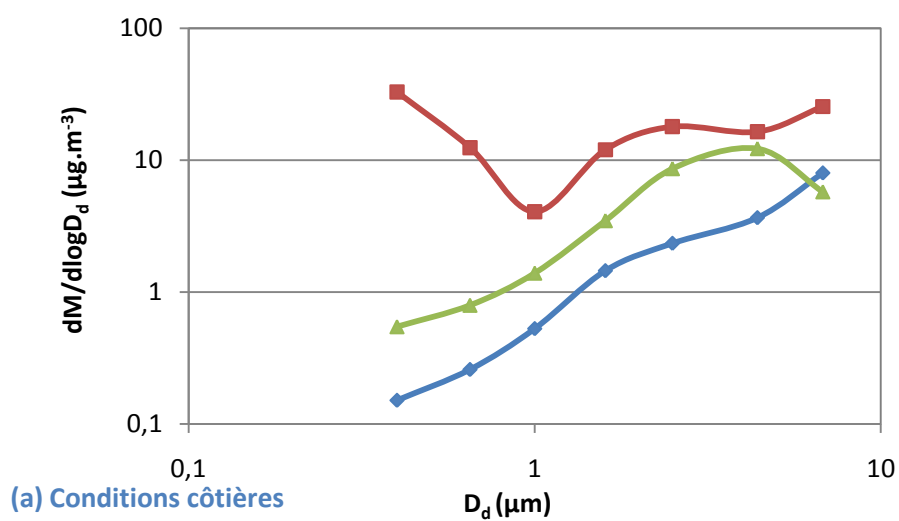


Figure 7-13 : Comparaison MACmod mesures (a) conditions côtières, (b) Mistral et (c) conditions méditerranéennes



Sur la Figure 7-13, on constate que MACMod surestime la concentration en sels de mer, d'un facteur inférieur à 3-4 dans les trois cas. En effet, le modèle évalue la concentration en aérosols marins, soit la concentration de tous les éléments contenus dans une gouttelette d'eau de mer (sels marins, matière organique, *etc.*). De plus, la masse calculée par le modèle pour le mode grossier ( $\approx 4 \mu\text{m}$ ) est proche de la masse totale mesurée, qui est pour ce mode essentiellement composé d'aérosols marins. Pour le mode d'accumulation ( $\approx 0.3 \mu\text{m}$ ), MACMod sous-estime d'un facteur 50 la masse totale pour les conditions côtières et méditerranéennes alors que par Mistral le facteur est de 2. En effet, par Mistral, les polluants anthropiques et terrigènes sont dispersés et le mode d'accumulation est essentiellement constitué de particules marines. Par contre, dans les conditions méditerranéennes et côtières, le mode d'accumulation est constitué de particules anthropiques et terrigènes.

La fonction source est donc fiable et propre aux particules issues de l'interaction vent-vagues car elle semble peu prendre en compte les composantes anthropiques et terrigènes. Il serait donc intéressant d'étendre le modèle au transport de particules autres que marines. La mise en place d'un profil vertical de concentration à l'entrée du domaine de calculs traduirait l'apport de particules de diverses origines.

## 7.4 Initialisation du modèle

Nous avons pu voir que selon les conditions météorologiques, le type de particules dans l'échantillon d'aérosol différait. En effet, dans le cas de masses d'air d'origine côtière, la composante anthropique est nettement plus importante que dans les conditions méditerranéennes. Le profil d'initialisation doit donc être très spécifique au cas étudié. De plus, la répartition verticale des aérosols dans le profil influe les résultats lorsque les calculs sont effectués pour des longues distances (plusieurs dizaines de kilomètres).

Le profil peut être déterminé paramétriquement ou bien être issu d'un modèle. Nous mettons actuellement en place au sein du laboratoire deux modèles de chimie-transport CHIMERE et WRF-Chem. Ces modèles effectuent des simulations des émissions et du transport des aérosols de diverses sources à l'échelle régionale. Les sorties de ces modèles permettront d'établir des profils d'entrée de concentrations en particules de diverses origines afin d'initialiser MACMod pour des simulations allant de l'échelle locale à régionale.

Par ailleurs, CHIMERE et WRF-Chem calculent la concentration en aérosol marin via la fonction source de Monahan et al. (1986). Nous pourrions alors également évaluer notre fonction source dans ces deux modèles et obtenir des cartes 3-D de la concentration en aérosol marin pour une résolution minimale de quelques kilomètres.

## 7.5 Synthèse

La campagne de mesure Porquerolles 2007 s'est déroulée du 23 au 29 mai 2007 à la station de Porquerolles. Les échantillons d'aérosols mesurés par les impacteurs en cascade ont permis de déduire la concentration en masse des composés chimiques suivant : OC, EC,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ox}^{2-}$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^{2-}$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NH}_4^+$  et des résidus non identifiés. Les composés sont caractéristiques des différentes sources des aérosols (marin, continental et anthropique). Les aérosols d'origine marine fraîchement formés ont la même composition que l'eau de mer. Les concentrations en masse des différents composés de l'eau de mer sont proportionnelles entre elles. Ainsi, à partir de la concentration en sodium dans les aérosols, qui est un élément peu réactif, on peut déduire les concentrations des autres composés lors de la formation des aérosols. Ceci permet de déduire le taux de déchloration et la contribution autre que marine des composés multi sources.

Selon la provenance des masses d'air et la vitesse du vent, la composition chimique des aérosols varie. Les aérosols sont essentiellement composés de sels lors de vents forts car les polluants sont dispersés. Lors de vents moyens à faibles, les composantes continentales et anthropiques sont dominantes. La production marine est moins efficace. De plus, les périodes d'accalmie favorisent la déchloration. Lorsque les masses d'air sont en provenance du sud, la composante terrigène est plus importante, on peut supposer la présence de poussières désertiques. Lorsque les masses d'air proviennent de la côte, on constate une anthropisation des particules plus importante.

Les simulations du modèle MACMod ont été comparées aux mesures pour les trois conditions météorologiques : côtier, Mistral et méditerranéen. Le modèle surestime d'un facteur inférieur à 3-4 la concentration en sels marins, pour les trois cas. Le modèle fournit des estimations relativement proches (facteur 2) de la masse totale en particules par Mistral, où les aérosols sont essentiellement de source marine. On peut donc supposer que le modèle prend peu en compte les sources autres que marines. Pour les conditions méditerranéennes et côtières, le modèle sous-estime la masse totale de particules submicroniques, qui sont essentiellement anthropiques et/ou terrigènes. Par la mise en place d'un profil vertical de concentration à l'entrée du domaine de calculs, les capacités du modèle peuvent être étendues au transport de particules autres que marines. Les profils de concentration pour les particules de différentes sources sont spécifiques au cas étudié. Prochainement, nous pourrions utiliser les sorties de modèle de chimie-transport tels CHIMERE et WRF-Chem pour initialiser MACMod.



## Partie 3 : Applications & Perspectives

La troisième partie est un cas d'application pour le modèle dans l'étude de la qualité de l'air. Elle se divise en deux chapitres.

Le premier concerne une étude menée à La Réunion sur les particules d'aérosols marins transitant sur la façade nord ouest de l'île. Cette campagne s'inscrit dans le cadre d'un important projet dirigée par la région Réunion concernant la création d'une nouvelle route entre St Denis et le Port. Son objectif premier était d'évaluer l'impact de la route sur les concentrations en aérosols marins le long de la falaise. Ce chapitre fait l'objet de ma petite contribution dans ce projet. D'un côté, nous avons pu mettre en évidence les effets de la circulation routière sur le transport de particules. D'autre part, nous avons étudié le transport de particules marines avec MACMod le long de la façade nord-ouest de l'île. Ceci a permis de mettre en place le couplage MACMod-MEDEX-Réunion qui modélise le transport en initialisant le modèle avec un profil d'entrée déterminée à l'aide de MEDEX-Réunion.

Le second chapitre est une étude préliminaire sur l'éventuelle possibilité d'utiliser MACMod comme une aide pour la modélisation de la **qualité de l'air**. Elle pourrait permettre de connaître la fraction de particules marines dans les concentrations de  $PM_{10}$ . Les sorties du modèle ont été comparées à des mesures de  $PM_{10}$  et des cartes analysées du réseau PREV'AIR et au modèle DREAM-SALT de l'université de Tel-Aviv. Les résultats obtenus sont très encourageants.



# **Chapitre 8. Modélisation du transport de particules marines sur la façade ouest de l'île de La Réunion**

## **8.1 Introduction**

La campagne de mesures de la Réunion s'est déroulée sur la façade nord ouest de l'île, du 25 juillet au 13 octobre 2012. Des sondes granulométriques et des capteurs météorologiques ont été installées sur 4 sites (Figure 8-1) : « Saint Denis », « Moulin Cader », « Petite Chaloupe » et « La Possession », au niveau de la route et de la falaise, ce qui correspond à 8 points de mesures. Les positions des stations ont été choisies dans le but d'étudier le transport d'aérosols le long de la côte ouest.

Les mesures se sont déroulées successivement sur les quatre sites. Au niveau de la route étaient disposées deux sondes optiques : la sonde CSASP-100-HV couvrant les diamètres de particules 0.75-95  $\mu\text{m}$  et la sonde ASASP-X pour les diamètres compris entre 0.094 et 2.92  $\mu\text{m}$ . Au sommet de la falaise, étaient installées une sonde ASASP-X aux mêmes caractéristiques et une sonde CSASP pour la gamme de taille 0.5-47  $\mu\text{m}$ . Les sondes étaient orientées face au vent afin d'étudier le transport des aérosols en amont.

Cette campagne, s'inscrivant dans le cadre d'un important projet dirigée par la région Réunion, avait pour principal objectif d'évaluer l'impact de la création d'une nouvelle route, entre St Denis et Le Port, sur les concentrations en aérosols marins le long de la falaise. Quant à ce chapitre, il s'articule autour de la mise en place d'un outil clé pour cette étude, le couplage MACMod-MEDEX-Réunion dont le but est d'initialiser MACMod avec un profil vertical de concentration calculé à partir de MEDEX-Réunion.



Figure 8-1 Les quatre stations de mesures sur la façade nord-ouest de l'île de La Réunion (Google Earth)

## 8.2 Conditions climatiques

### 8.2.1 Régime de vent

L'île de La Réunion est principalement soumise aux régimes des Alizés. Ces vents réguliers et parfois forts, sont générés par des gradients de pression entre les anticyclones subtropicaux et les dépressions équatoriales. La Figure 8-2 représente la carte des vents dans des conditions typiques d'Alizés australes. Ces vents sont essentiellement de secteur sud-est, la façade nord-ouest de l'île (sous le vent) est donc généralement protégée. Cependant, dans les conditions cycloniques, la façade nord-ouest peut être soumise à des vents violents, par exemple pendant le passage du cyclone Dumile le 3 janvier à 12h (Figure 8-3).

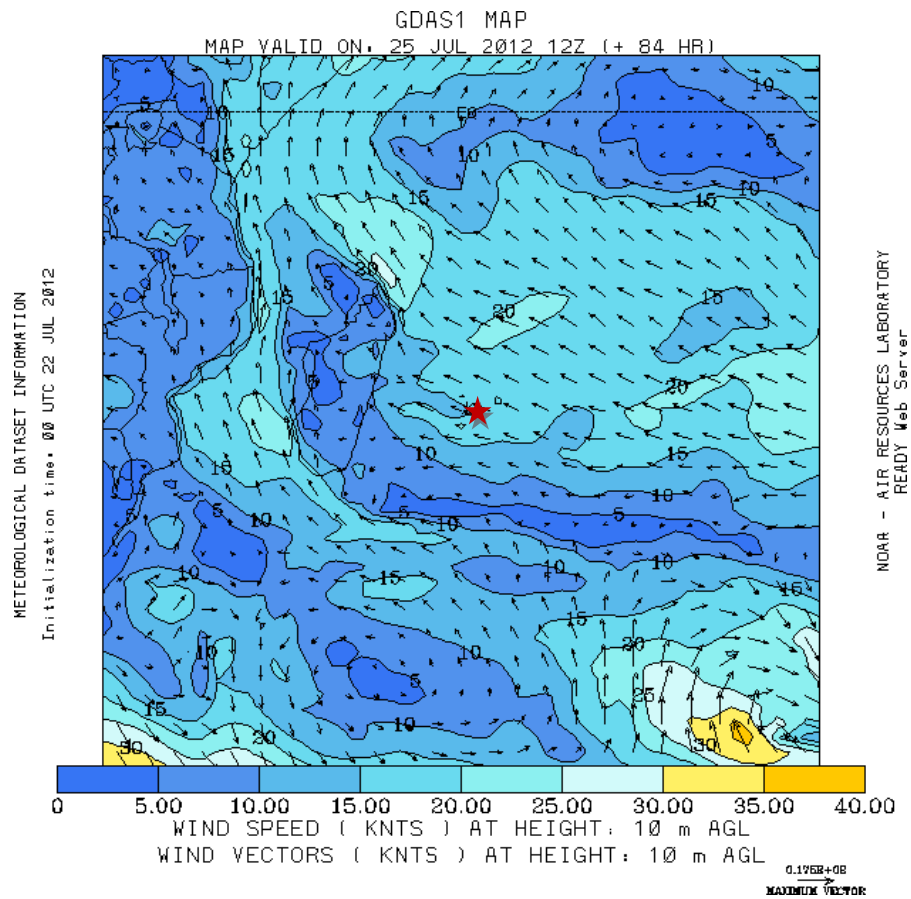


Figure 8-2 : Carte des vents dans des conditions d'Alizés à La Réunion, le 25/07/2012 à 12h (HYSPLIT). L'étoile rouge représente La Réunion.



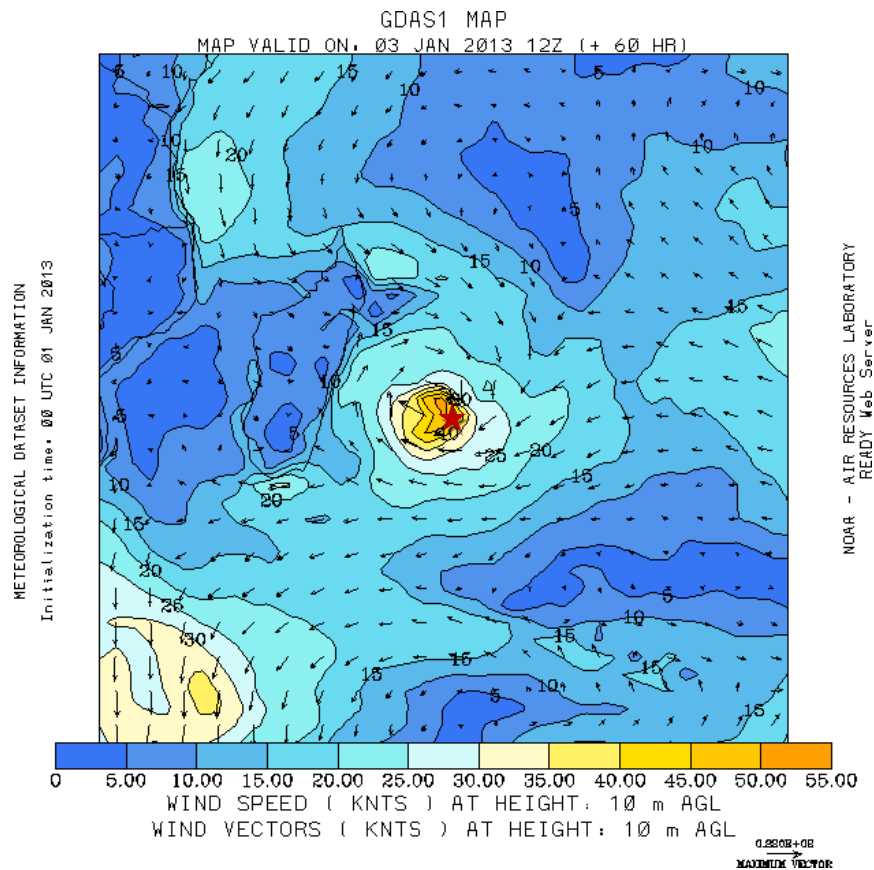


Figure 8-3 : Carte des vents à La Réunion lors du passage du cyclone Dumile, le 03/01/2013 à 12h (HYSPLIT). L'étoile rouge représente La Réunion.

Les mesures se sont déroulées durant des conditions d'Alizés. Au cours de cette étude, nous nous intéresserons uniquement à ces conditions de vent. La Figure 8-4 présente la fréquence des différentes classes de vent ainsi que les fréquences de ses directions pour les quatre stations. Durant la période de mesures, le vent a rarement dépassé  $10 \text{ m.s}^{-1}$ . Aux stations de La Possession et Petite Chaloupe, le vent était quasi absent. En analysant les fréquences d'intensité de vent et les directions en fonction de la position des relevés (Figure 8-4), on voit que les vents sont relativement forts et orientés est à St Denis. Au fur et à mesure qu'on se déplace vers l'ouest, les vents faiblissent et tournent vers le nord en longeant la côte. Les stations de la Petite Chaloupe et La Possession sont ainsi abritées, dans le sillage de l'île.

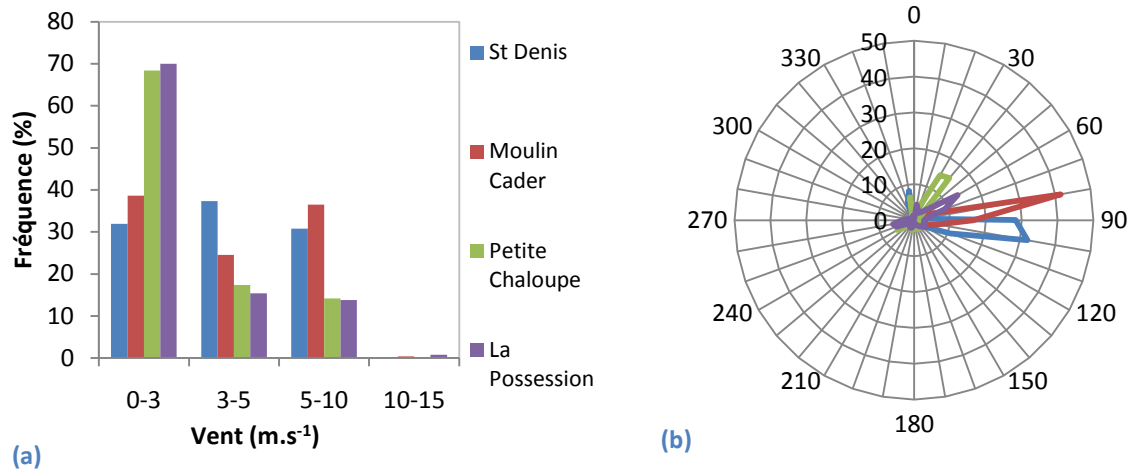


Figure 8-4 : Fréquence du vent en vitesse (a) et en direction (b) à St Denis, Moulin Cader, Petite Chaloupe et La Possession.

## 8.2.2 Origine des masses d'air

Dans les conditions Alizés, les masses d'air parcourent l'océan Indien sur plusieurs milliers de kilomètres avant d'atteindre l'île de La Réunion (Figure 8-5). Les sources anthropiques et terrigènes extérieures à La Réunion sont fortement dispersées. Les échantillons d'aérosols en provenance de l'océan sont donc essentiellement de composante marine.

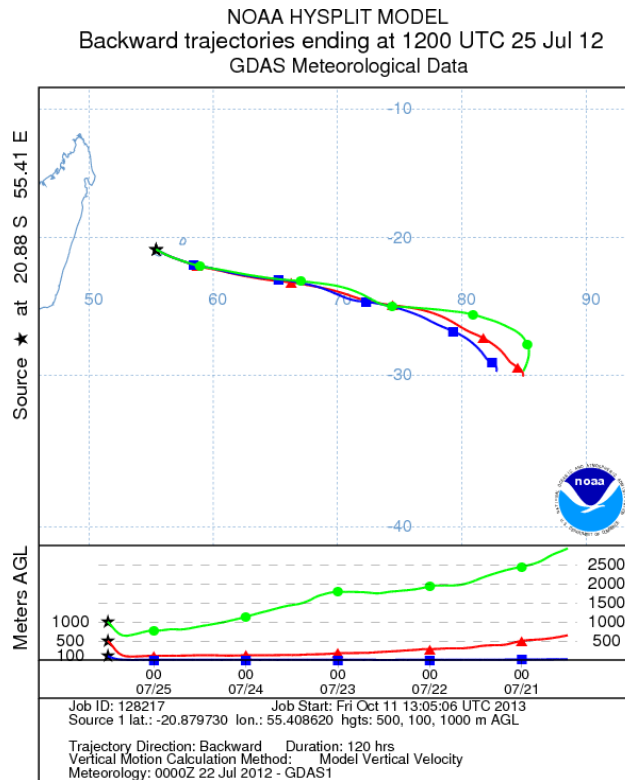


Figure 8-5 : Retro-trajectoire des masses d'air dans des conditions Alizés, le 25/07/2012 à 12h (HYSPLIT)

### 8.2.3 Champ de vagues

PREVIMER fournit des prévisions de la hauteur significative des vagues ainsi que de leur direction dans le monde à l'aide du modèle WAVEWATCH III. Le modèle tourne également à l'échelle régionale sur l'île de La Réunion. La Figure 8-6 illustre le champ de vagues pour des conditions typiques d'Alizés. Le champ de vagues est essentiellement de secteur est à sud-est. Il contourne l'île par l'est et l'ouest et longe la façade nord-ouest entre St Denis et Le Port où les hauteurs de vagues sont les plus faibles.

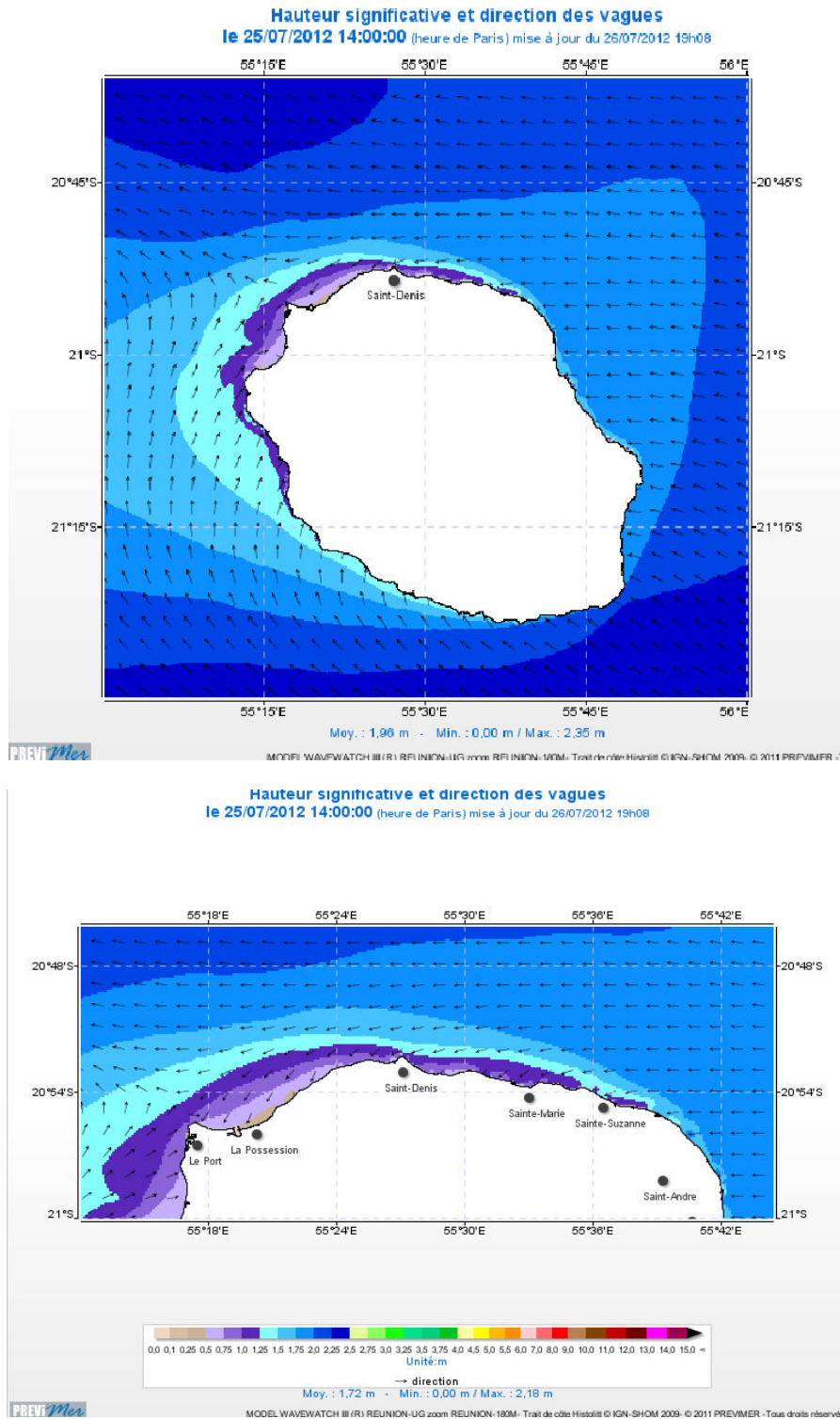


Figure 8-6 : Hauteur significative et direction des vagues issue du modèle wavewatch III à la Réunion le 25/07/2012 à 14h (PREVIMER)

## 8.3 Distributions granulométriques

### 8.3.1 Comparaison : Méditerranée vs La Réunion

Jusqu'à présent, nos études se sont focalisées sur la région Méditerranéenne nord occidentale. Les conditions météorologiques et océanographiques diffèrent de celles de la région réunionnaise ce qui influence probablement la production d'aérosols marins.

La Figure 8-7 présente les distributions granulométriques moyennes mesurées sur le navire Atalante (campagne MIRAMER, en Méditerranée) et à la station de St Denis pour des vents de 5 et 10 m.s<sup>-1</sup>. Le nombre de particules est nettement plus important à La Réunion. Il a donc été nécessaire de revisiter le modèle paramétrique MEDEX afin de l'adapter au site de La Réunion. Les coefficients ont été établis à partir des mesures effectuées à la station de St Denis.

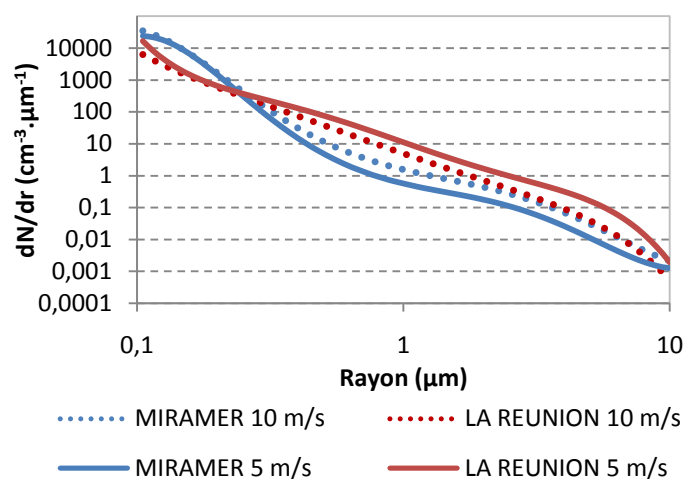


Figure 8-7 : Distributions granulométrique en Méditerranée (MIRAMER) et à La Réunion (St Denis)

### 8.3.2 Evolution de la concentration avec le vent

Sur la Figure 8-7, nous remarquons également une concentration en particules à La Réunion plus faible pour un vent de 10 m.s<sup>-1</sup>. Or, nous avons remarqué le phénomène inverse en Méditerranée (cf. section 5.4.3). La Figure 8-8 représente le logarithme de la concentration en fonction de la vitesse du vent pour des particules de 0.5 et 5 μm mesurées à St Denis qui sont typiquement de sources marine. La pente est nulle pour les particules submicroniques et négatives pour les supermicroniques. Par ailleurs, les pentes négatives sont d'autant plus fortes pour les mesures effectuées à la station de Moulin Cader alors qu'à La Possession elles ont tendance à être nulle

(Figure 8-9). Le vent ne semble donc pas influencer la production en particules marines mesurées sur la côte nord-ouest.

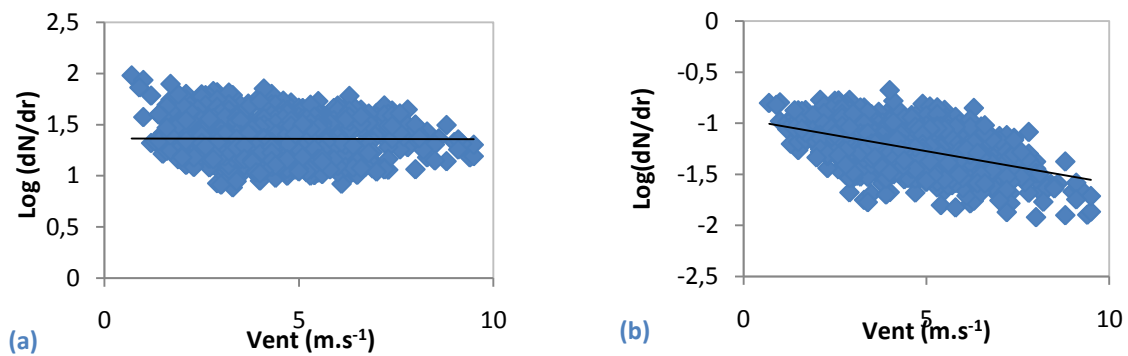


Figure 8-8 : Relation entre le logarithme de la concentration et la vitesse du vent à St Denis pour des particules de 0.5  $\mu\text{m}$  (a) et 5  $\mu\text{m}$  (b)

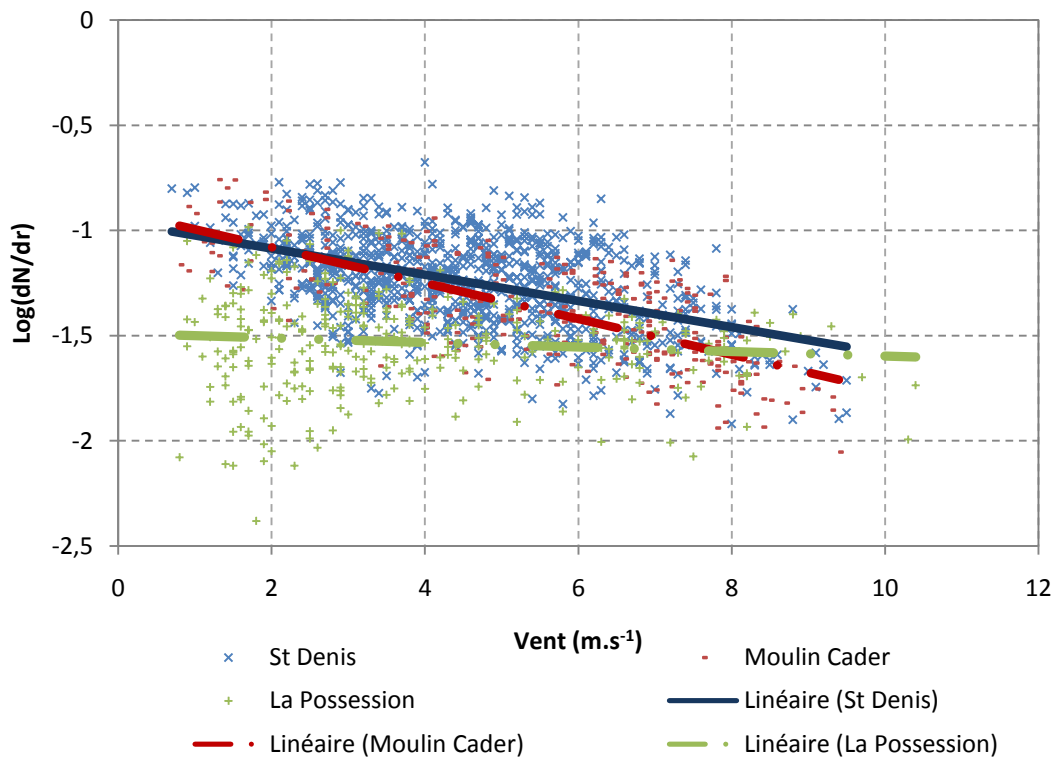


Figure 8-9 : Relation entre le logarithme de la concentration et la vitesse du vent à St Denis, Moulin Cader et La Possession pour des particules de 5  $\mu\text{m}$

### 8.3.3 Evolution de la concentration le long de la façade nord-ouest de l'île

Dans les conditions d'Alizés, le vent de secteur Est arrive à St Denis puis longe la côte nord-ouest jusqu'à La Possession. La Figure 8-10, présente les distributions granulométriques

moyennes mesurées aux quatre stations pour un vent de  $6 \text{ m.s}^{-1}$ . De St Denis à La Possession le nombre de particules décroît quelque soit leur taille.

La concentration en particules tend donc à diminuer le long de la façade nord-ouest. De plus, nous n'avons pas observé de production en particules marines due à l'interaction vent-vagues. Par ailleurs, le champ de vagues longe la côte nord-ouest ce qui engendre peu de zone de surf. La production locale est probablement faible devant l'apport de particules générées en amont de St Denis.

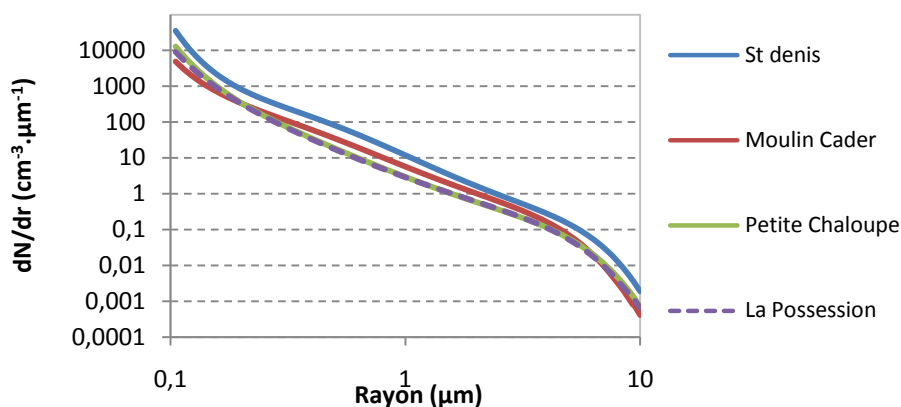


Figure 8-10 : Distribution granulométrique moyenne mesurée aux stations de St Denis, Moulin Cader, Petite Chaloupe et La Possession pour un vent de  $6 \text{ m.s}^{-1}$

## 8.4 Couplage MACMod-MEDEX-Réunion

### 8.4.1 Calcul de la concentration à St Denis à l'aide de MACMod

Nous avons constaté dans la section précédente que les distributions granulométriques différaient entre la région réunionnaise et la région méditerranéenne nord occidentale. Ces différences de concentrations en particules sont en partie dues aux fetches extrêmement longs dans l'océan indien. Nous effectuons des simulations MACMod pour 5 vitesses de vent comprises entre 5 et  $9 \text{ m.s}^{-1}$ . Nous prenons une grille de 1500 km de long afin d'obtenir un profil de concentration correct à St Denis. Les paramètres de simulation sont détaillés dans le Tableau 8-1. Le modèle utilise la fonction source de Demoisson et al. (2013) qui a été établie dans des conditions méditerranéennes. Les sorties du modèle sont comparées aux mesures effectuées à St Denis « niveau mer ». Le Tableau 8-2 présente le rapport entre les concentrations estimées par le modèle et les mesures.

Fonction source	Nombre de mailles horizontales	Pas d'espace horizontal	Hauteur de la couche de surface	Hauteur de la CLAM
Demoisson et al. (2013)	500	2000 m	10 m	1000 m
Nombre de mailles verticales	Pas d'espace vertical	Pas de temps	Initialisation avec un profil vertical	ASTD
31	Mailles étirées	automatique	aucune	0
Vitesse verticale du vent	Vitesse horizontale du vent	Zone de surf	Dépôt	Température air
0	Paramétrique (profil log)	aucune	Fairall et al. (1986)	20 °C

Tableau 8-1 : Paramètres de simulation

Dans l'ensemble, MACMod fournit des estimations correctes de la concentration en particules marines. Le rapport est en majorité inférieur à 3, notamment pour les particules comprises entre 0.5 et 5  $\mu\text{m}$ . Le modèle surestime la concentration en particules de 0.1  $\mu\text{m}$ . En effet, nous avons démontré que la fonction source est plutôt fiable entre 0.5 et 5  $\mu\text{m}$  et que pour 0.1  $\mu\text{m}$ , le flux de production en particules marines pouvaient être entachée d'une erreur due au long temps de résidence de ces particules dans l'atmosphère. De plus, ces petites particules peuvent également être d'origine continentale.

$U_{10} \text{ (m.s}^{-1}) \setminus r \text{ (}\mu\text{m)}$	0.1	0.5	1	2.5	5
5	2.70	0.42	0.46	0.62	0.08
6	4.75	1.90	1.88	2.90	0.75
7	9.75	1.31	1.49	2.57	1.17
8	20.96	2.14	2.61	4.94	3.05
9	31.03	3.10	3.82	7.47	5.98

Tableau 8-2 : Rapport de concentration entre le modèle et les mesures de St Denis niveau mer pour différentes vitesses de vent et rayons de particules

Nous disposons également de mesures prises au niveau de la falaise à St Denis, soit à 245 m d'altitude. Les concentrations calculées par le modèle sont extraites pour cette altitude et comparées aux mesures. Le Tableau 8-3 présente le rapport de concentration entre les sorties du modèle et les mesures. Nous constatons que ce rapport est en moyenne de l'ordre de 6 pour les particules supérieures ou égales à 0.5  $\mu\text{m}$ . MACMod surestime nettement les mesures. Nous notons que le profil logarithmique du vent déterminé par MACMod à partir de la vitesse réelle du vent à 10 m est sous évalué par rapport aux mesures (Figure 8-11). Par ailleurs, le modèle ne prend pas en compte le relief et donc les phénomènes de dépôts sur la falaise ou d'aspiration des masses d'air.



$U_{10} \text{ (m.s}^{-1}) \setminus r \text{ (}\mu\text{m)}$	0.1	0.5	1	2.5	5
5	18.94	8.29	9.10	11.91	4.09
6	10.31	2.76	2.23	1.40	0.16
7	10.07	4.46	5.61	4.43	0.74
8	7.59	6.51	9.49	10.11	2.10

Tableau 8-3 : Rapport de concentration entre le modèle et les mesures de St Denis niveau falaise pour différentes vitesses de vent et rayons de particules

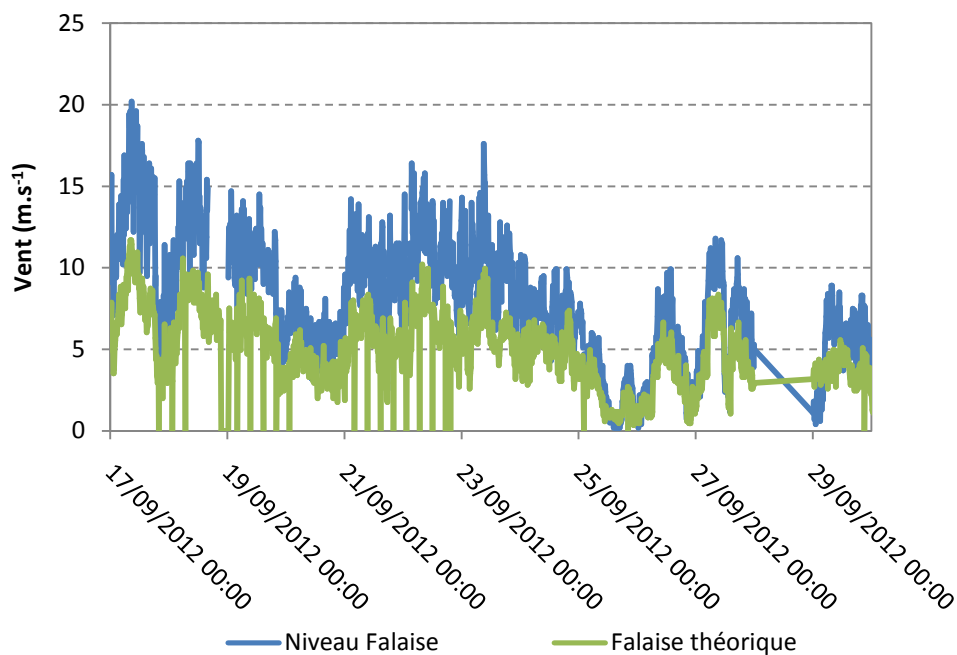


Figure 8-11 : Vitesses du vent niveau mer et niveau falaise mesurés à st Denis et vitesse du vent théorique niveau falaise calculé par MACMod

MACMod fournit donc une estimation correcte de la concentration en particules marines dans la région réunionnaise malgré l'extrême longueur des fetches. Cependant, ne prenant pas en compte le relief, ses estimations sont correctes uniquement pour des faibles altitudes. Par ailleurs, si nous voulons étudier le transport de particules sur la façade nord ouest de l'île à l'échelle locale ou régionale, il est préférable d'initialiser le modèle avec un profil vertical de concentration afin d'éviter un domaine de calculs trop grand (fetch de plusieurs milliers de kilomètres). En effet, le pas d'espace horizontal est constant dans le modèle.

#### 8.4.2 Mise en place du couplage MACMod-MEDEX-Réunion

L'objectif est d'initialiser MACMod avec un profil vertical de concentration à l'entrée du domaine. Le modèle paramétrique MEDEX-Réunion fournit la valeur d'initialisation du profil à 10 m à partir de la vitesse du vent.

### a. Profil vertical de concentration

Nous supposons que le profil suit la loi de type logarithmique suivante :

$$\frac{N(z)}{N_{\text{mer}}} = \exp\left(a \ln\left(\frac{z}{z_{\text{mer}}}\right)\right) = \left(\frac{z}{z_{\text{mer}}}\right)^a \quad (8-1)$$

Avec,

$$a = \ln\left(\frac{N_{\text{falaise}}}{N_{\text{mer}}}\right) / \ln\left(\frac{z_{\text{falaise}}}{z_{\text{mer}}}\right) \quad (8-2)$$

La concentration est supposée constante sur la première dizaine de mètres d'altitude.

L'objectif est de calculer le profil vertical de concentration en particules à partir de la concentration à 10 m de haut. Pour ce, nous cherchons à déterminer une formule générale du coefficient  $a$  (Eq. (8-2)) en fonction du rayon des particules. Ce coefficient est considéré constant pour une vitesse de vent de l'ordre de 7 à 10 m.s<sup>-1</sup>. Sur l'ensemble des données de Saint Denis, on sélectionne les cas suivant :

- L'écart entre les directions de vent au niveau de la falaise et au niveau de la route est inférieur à 10°
- La concentration décroît avec l'altitude
- Le vent est supérieur à 7 m.s<sup>-1</sup>.

Pour l'ensemble des données répondant à ces critères, nous déterminons la plage de valeur du coefficient  $a$ , représenté par les boîtes à moustaches sur la Figure 8-12.

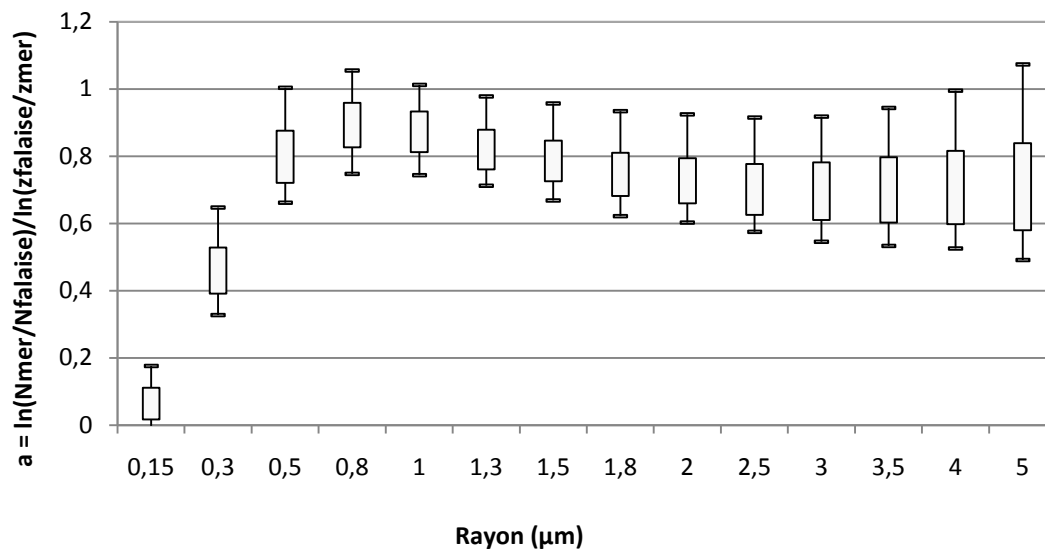


Figure 8-12 : Coefficient  $a$  en fonction du rayon des particules. Les symboles '+' et '-' correspondent respectivement à la moyenne, au maximum et minimum, les sommets supérieurs et inférieurs des rectangles représentent l'intervalle de confiance à 98%.

On établit alors une formule empirique fonction du rayon, telle que :

- Si  $r < 1 \mu\text{m}$

$$a = 1.0294 \log(r) + 1.0113 \quad (8-3)$$

- Si  $1 \leq r < 2 \mu\text{m}$

$$a = -0.4905 \log(r) + 0.8733 \quad (8-4)$$

- Si  $r \geq 2 \mu\text{m}$

$$a = 0.71 \quad (8-5)$$

Une procédure a été mise en place dans MACMod pour calculer le profil vertical de concentration déterminé dans l'équation (8-1). La concentration niveau mer peut être imposée ou calculée par MEDEX-Réunion.

## b. Validation du profil vertical avec Aeronet

Les profils verticaux sont générés pour trois vitesses de vent (7, 8 et 9 m.s<sup>-1</sup>). La concentration à 10 m provient de MEDEX-Réunion. Le Tableau 8-4 regroupe les valeurs du rapport entre les profils verticaux intégrés suivant la verticale et les distributions volumiques intégrées sur la verticale fournies par AERONET.

$U_{10} \text{ (m.s}^{-1}\text{)} / r(\mu\text{m})$	0.1	0.5	1	2.5	5
7	0.91	0.33	0.22	0.34	2.90
8	0.91	0.39	0.28	0.47	4.45
9	0.91	0.48	0.35	0.65	6.83

Tableau 8-4 : Rapport entre les distributions intégrées sur la verticale et les distributions volumiques d'Aeronet.

Dans l'ensemble, le profil vertical intégré sur la colonne d'air sous-estime les distributions volumiques fournies par AERONET. Le rapport de concentration reste proche pour les particules inférieures à 5  $\mu\text{m}$ . Cependant, notons que les distributions volumiques sont calculées à partir de l'épaisseur optique mesurée sur toute la colonne d'air (plusieurs kilomètres) ce qui implique un certain nombre d'incertitudes.

## 8.5 Transport de particules à l'échelle locale

### 8.5.1 Influence du trafic routier sur le transport de particules à l'échelle hectométrique

La route reliant St Denis à La Possession est un important axe de circulation. Du 10 au 12 octobre 2012, les sondes granulométriques ont été installées de chaque côté de la route, «côté mer» et «côté falaise», au même niveau et séparées d'une centaine de mètres environ. Les mesures se sont déroulées dans des conditions de vent de secteur nord-nord-est ( $30^\circ$ ) à La Grande Chaloupe. L'angle formé par la côte et la direction du vent est d'une trentaine de degrés.

Durant ces deux jours de mesures, l'épaisseur optique est inférieure à 0.15 (440 nm) et le coefficient d'Angström est compris entre 1.2 et 1.6 à St Denis (Figure 8-13). Selon la classification de Toledano et al. (2007), les particules sont essentiellement d'origine marine. Cependant, en raison du coefficient d'Angström élevé, on peut supposer également une composante continentale (naturelle ou anthropique) dans les aérosols submicroniques.

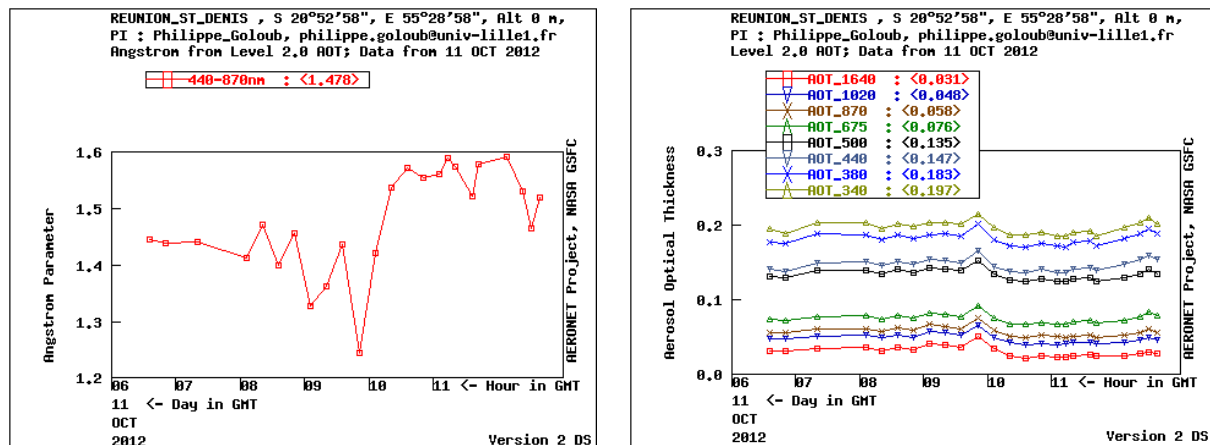


Figure 8-13 : Coefficient d'Angström (a) et Epaisseur optique (b) le 11 octobre 2012 à St Denis (AERONET)

En étudiant le logarithme de la concentration en fonction de la vitesse du vent, nous avons constaté que les résultats sont similaires à ce que l'on retrouve sur la Figure 8-8a. Le logarithme de la concentration en fonction de la vitesse du vent décroît très faiblement lorsqu'il dépasse 5  $\text{m.s}^{-1}$ . Ainsi, la production marine locale est faible comparé à l'advection de particules par le vent.

La Figure 8-14 présente les concentrations mesurées des deux côtés de la route ainsi que la vitesse du vent en fonction du temps pour des particules de  $0.21 \mu\text{m}$  (a),  $1.5 \mu\text{m}$  (b) et  $8 \mu\text{m}$  (c) de diamètre.

Les particules submicroniques sont plus nombreuses côté mer (Figure 8-14a). Leur concentration ne dépend pas de la vitesse du vent, à l'exception du 11 entre 6h et 12h où lorsque le vent augmente, le nombre de particules augmente près de la falaise et tend à diminuer au bord de mer.

Les particules sont dispersées par le vent et s'accumulent au pied de la falaise. A partir de 12h, lorsque le vent tombe, la concentration au bord de mer ré-augmente. Le vent semble jouer un rôle sur la dispersion de ces particules qui sont en partie continentales.

Les particules microniques sont essentiellement d'origine marine (Figure 8-14b). Par vent faible, les concentrations mesurées des deux côtés de la route sont très similaires. Par contre, lorsque le vent augmente, la concentration augmente nettement plus au bord de mer qu'au pied de la falaise, avec un rapport de 2.5. Ces particules étant peu soumises à la gravité et pouvant être transportées sur plusieurs centaines de kilomètres, la différence de concentration ne peut s'expliquer par du dépôt sur une courte distance. Cette différence observée des deux côtés de la route peut s'expliquer par le fait que le trafic routier génère des turbulences interférant avec l'advection du vent. Les particules atteignent alors plus difficilement l'autre côté.

Les concentrations en grosses particules sont équivalentes côté mer et côté falaise (Figure 8-15c). Cependant, on observe plus de particules côté falaise lorsque le vent est au maximum, soit  $8 \text{ m.s}^{-1}$ . On peut supposer une accumulation de particules près de la falaise et que le vent est assez fort pour leur faire franchir efficacement la route.

La Figure 8-15 présente le rapport de concentration entre les côtés « mer » et « falaise » en fonction du temps (a) et en fonction du vent (b) pour différentes tailles de particules. On constate qu'entre 4h et 9h du matin (UTC), soit entre 0h et 5h heure locale, le rapport est proche de 1 alors que le reste du temps, il prend des valeurs plus éparses. Le trafic routier est moins dense à ces heures ci, pourtant, cette période correspond également à un vent soufflant plus fort. En effet, la Figure 8-15b montre que les valeurs du rapport sont également moins éparses lorsque le vent dépasse  $6 \text{ m.s}^{-1}$ .

La période de mesures est relativement courte pour que l'on puisse en tirer des conclusions plus poussées. Il serait intéressant de mener cette étude sur une série d'alternance jour/nuit. Il semblerait que le trafic routier modifie le transport horizontal des particules par la génération de turbulences. De plus, on observe des concentrations similaires des deux côtés de la route entre 4h et 9h (UTC), lorsque le trafic est moins dense mais aussi lors d'un vent plus fort. Ceci peut s'expliquer par le fait que le vent plus fort compense les effets du trafic routier ou par l'absence de circulation routière. Par ailleurs, les mesures de concentrations sont moyennées sur dix minutes et nous n'observons pas de biais entre les deux appareils. Nous pouvons donc exclure les erreurs de mesures comme source de différences de concentrations entre ce qui est mesuré côté mer et côté falaise.

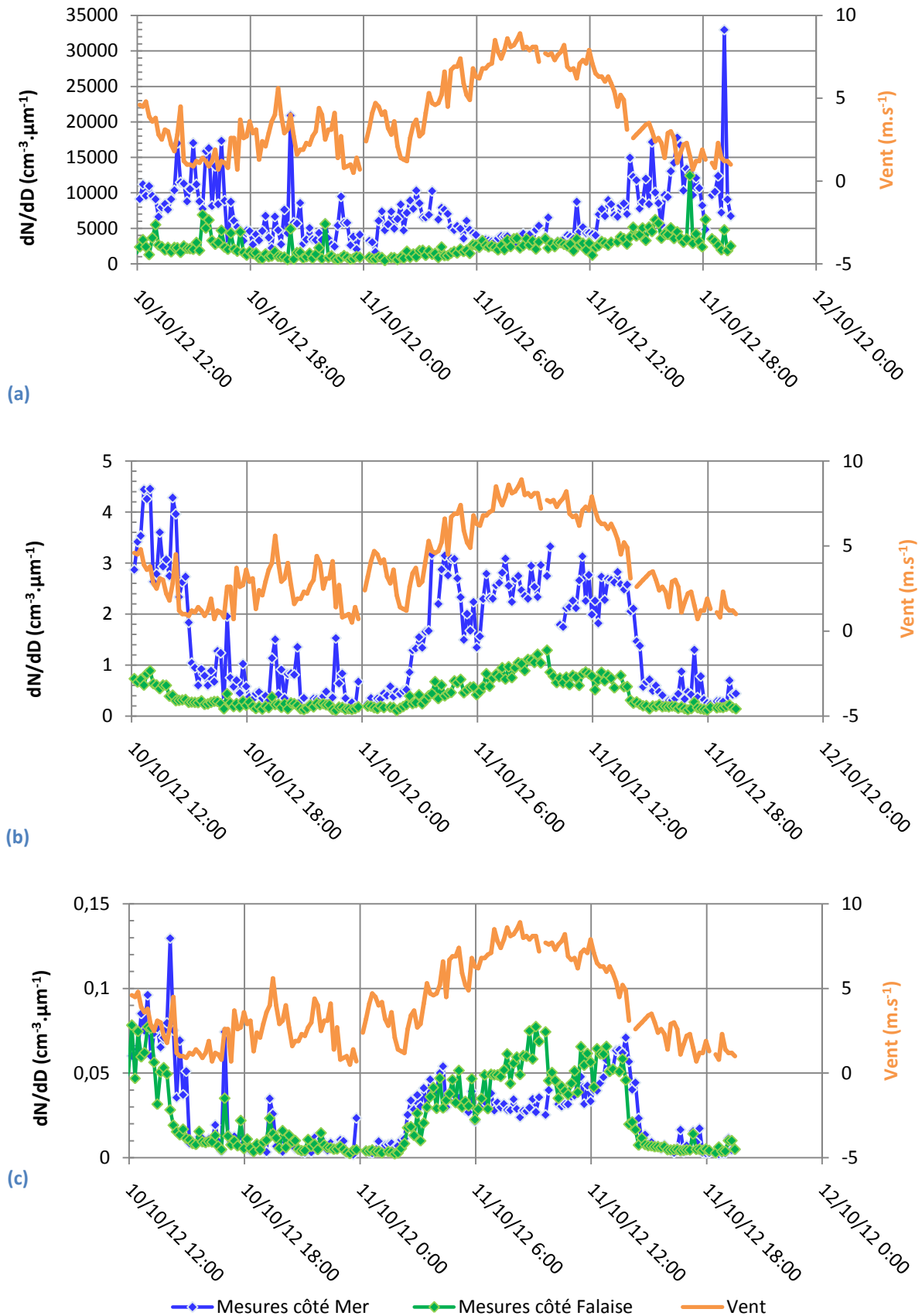


Figure 8-14 : Concentration mesurée « côté mer » et « côté falaise » de la route et vitesse du vent pour des particules de diamètre égal à 0.21  $\mu\text{m}$  (a), 1.5  $\mu\text{m}$  (b) et 8  $\mu\text{m}$  (c) (Heure UTC).

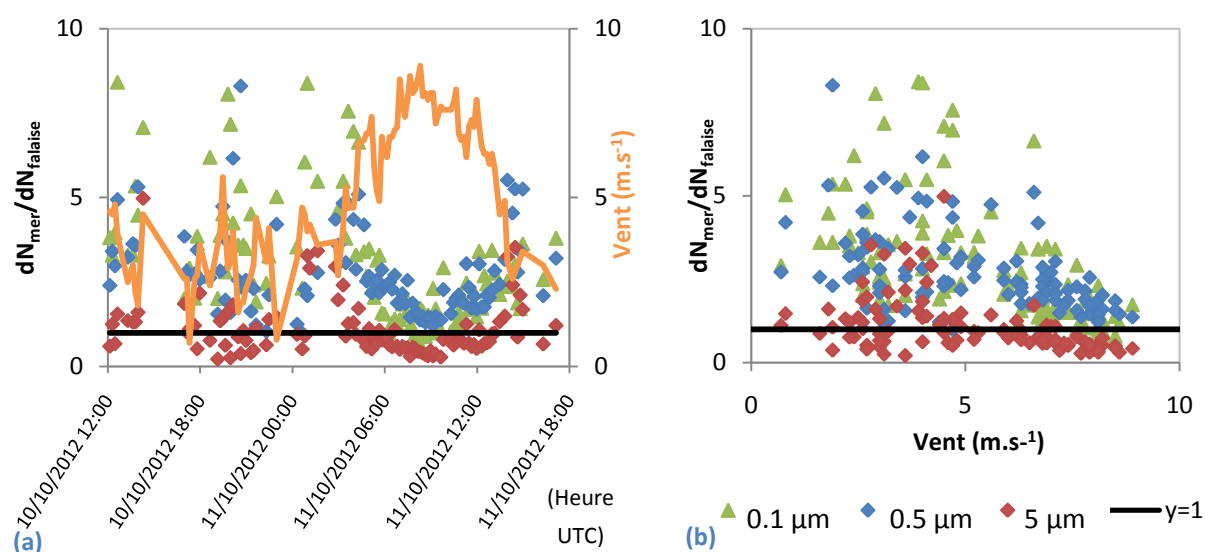


Figure 8-15 : Rapport de concentrations mesurées sur la route « côté mer » et « côté falaise » au cours du temps (a) et en fonction du vent (b) pour des particules de 0.1, 0.4 et 5 µm. La droite noire correspond au cas où la concentration est identique des deux côtés de la route.

### 8.5.2 Modélisation du transport de particules sur la façade nord ouest de la Réunion

On établit trois profils d'initialisation correspondant à trois vitesses de vent 7, 8 et 9  $\text{m.s}^{-1}$ . Ils sont déterminés à partir de la concentration calculée par MEDEX-Réunion (*cf.* section 8.4.2). Ces profils sont utilisés pour initialiser MACMod pour les mêmes conditions de vent et cinq rayons de particules (0.1, 0.5, 1, 2.5 et 5 µm). Les paramètres de simulation sont regroupés dans le Tableau 8-5. Les sorties du modèle sont ensuite comparées aux mesures du niveau route ( $z=10$  m) des quatre sites : Saint Denis, Moulin Cader, Petite Chaloupe et La Possession (Figure 8-16). Ils correspondent respectivement à 0, 4, 9 et 11 km de distance par rapport à la position du profil d'entrée. Cependant, les mesures de particules prises sur l'ensemble des quatre sites n'ont pas été effectuées simultanément. Ainsi, nous sélectionnerons des mesures effectuées dans des conditions de vent similaires à celles du profil d'entrée.

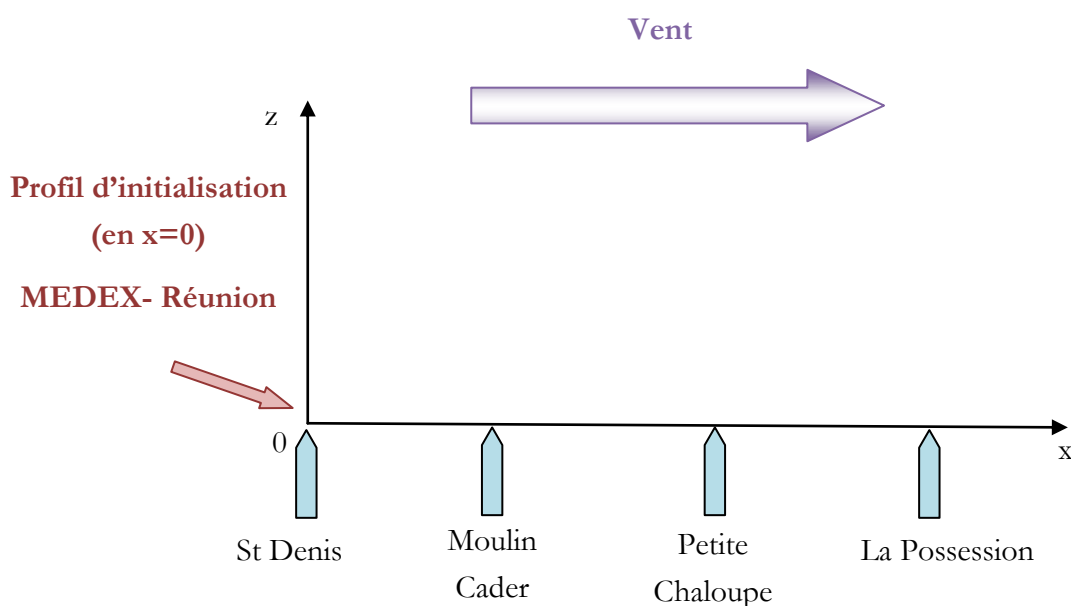


Figure 8-16 : Schéma de la simulation, position des quatre stations à La Réunion et Initialisation de MACMod avec MEDEX-Réunion

Fonction source	Nombre de mailles horizontales	Pas d'espace horizontal	Hauteur de la couche de surface	Hauteur de la CLAM
Flux nul	110	100 m	10 m	1000 m
Nombre de mailles verticales	Pas d'espace vertical	Pas de temps	Initialisation avec un profil vertical	ASTD
31	Mailles étirées	automatique	Profil log/MEDEX	0
Vitesse verticale du vent	Vitesse horizontale du vent	Zone de surf	Dépôt	Température air
0	Paramétrique (profil log)	aucune	Fairall et al. (1986)	20 °C

Tableau 8-5 : Paramètres de simulation

On effectue des simulations avec des profils de concentration initiale générés paramétriquement pour les trois vitesses de vent que l'on compare ensuite aux mesures. Le rapport entre les concentrations calculées par le modèle et les concentrations mesurées sont regroupées dans le Tableau 8-6.



Site	$U_{10}$ (m.s <sup>-1</sup> ) / Rayon (μm)	0.1	0.5	1	2.5	5
Saint Denis	9	0.91	1.21	2.36	2.02	5.55
	8	0.42	0.61	0.99	0.81	1.28
	7	0.82	0.63	1.03	0.73	1.13
Moulin Cader	9	1.90	1.60	1.52	1.67	5.13
	8	3.37	2.07	1.94	1.91	6.69
	7	1.01	0.58	0.60	0.49	1.06
Petite Chaloupe	9	0.87	6.20	10.08	5.76	8.67
	8	1.15	3.33	3.97	2.37	3.25
	7	1.15	2.79	3.15	1.73	2.11
La Possession	9	1.86	3.02	3.59	2.64	3.50
	8	2.37	3.98	3.94	2.45	2.77
	7	2.23	3.52	3.55	2.33	3.06

Tableau 8-6 : Rapport concentrations modélisées avec profil automatique sur mesures pour les sites de Saint Denis, Moulin Cader, Petite Chaloupe et La Possession

Dans l'ensemble, les sorties du modèle tendent à surestimer les valeurs expérimentales, notamment pour les particules de 5 μm et les mesures à la Petite Chaloupe. En effet, pour les grosses particules, le coefficient permettant de calculer le profil vertical est déterminé de manière moins précise que pour les petites particules. En effet, sur la Figure 8-12, on constate des valeurs plus dispersées du coefficient lorsque la taille des particules augmente. Pour la Petite Chaloupe, les conditions rencontrées ne permettent pas de comparer de façon précise car elles sont différentes de St Denis, ce qui peut expliquer le rapport élevé.

## 8.6 Synthèse

L'objectif premier de cette campagne de mesures était d'évaluer l'impact d'une nouvelle route sur la concentration en particules marines sur les falaises. Ma contribution dans ce projet consistait essentiellement dans la mise en place du couplage MACMod-MEDEX-Réunion. Nous avons ainsi automatisé le profil d'initialisation de concentration de MACMod à l'aide de concentration fournie par MEDEX-La Réunion. Ceci a permis d'étudier le transport de particules le long de la façade nord-ouest de l'île.

Une étude succincte des séries de mesures, nous a permis de constater les effets du trafic routier sur le transport de particules marines à l'échelle locale. Nous avons également pu mettre en évidence que la majorité des particules marines ne sont pas générées localement mais sont transportées le long du fetch. Le bruit de fond en particules marines est fort à La Réunion comparée à la Méditerranée en raison des fetches de plusieurs milliers de kilomètres. Il est donc plus difficile d'évaluer les effets de la vitesse du vent sur la production.

De plus, les mesures de distributions granulométriques de St Denis nous ont permis d'évaluer notre fonction source hors région méditerranéenne. Le facteur de confiance à 68 % entre les

sorties de MACMod et les mesures est inférieur à 3 pour des particules de 0.5-5  $\mu\text{m}$ . Le modèle semble estimer correctement la concentration en particules marines dans les eaux indiennes. L'étude étant menée sur 3 cas de vent, il serait néanmoins nécessaire de la renouveler pour d'autres vitesses de vent et d'autres positions géographiques.

# Chapitre 9. MACMod & La prévision de la Qualité de l'air

## 9.1 Problématique

L'industrialisation n'a cessé de se développer au cours des XIX<sup>ème</sup> et XX<sup>ème</sup> siècles favorisant les problèmes de pollution atmosphérique. Des épisodes dramatiques de pollution de l'air ont alerté l'opinion publique sur les effets des différents polluants rejetés dans l'atmosphère sur la santé. En effet, durant le grand Smog de Londres, en 1952, les premiers comptes rendus avaient estimé qu'il y avait eu 4000 morts (12 000 selon des récentes études) et 100 000 malades à Londres (Figure 9-1).



Figure 9-1 : Le grand Smog de Londres en 1952.

La région Provence Alpes Côte d'Azur (PACA) est délimitée par les Alpes à l'est et au nord, le Rhône à l'ouest et la mer Méditerranée au sud. C'est la première région touristique de France et environ 5 millions d'habitants y résident à l'année. Elle abrite de vastes parcs naturels, des zones agricoles, des grands centres urbains (Marseille) et l'un des plus gros sites industriels européens, le pôle de Fos-Berre, d'où les nombreux axes de transit (aéroports, activité maritime, etc.). Les sources naturelles et anthropiques de pollutions sont alors multiples : mer, poussières désertiques, transport, industries, agricultures, résidences, etc. Le fort ensoleillement ainsi que la composante marine des aérosols (sel de mer) engendrent une pollution photochimique relativement élevée comparée au reste de l'Europe. En raison de toutes ces sources de pollution atmosphérique, la surveillance de la qualité de l'air est devenue une priorité dans la région PACA.

Différents organismes travaillent sur la prévision de la qualité de l'air de l'échelle nationale (PREV'AIR) à l'échelle régionale (Air PACA). L'idée est d'évaluer MACMod en temps que

modèle de prévision de  $PM_{10}$  « marins » à l'échelle locale et de le comparer aux modèles de prévision courant.

## 9.2 Modélisation des $PM_{10}$

### 9.2.1 Définition

Les  $PM_{10}$  (*Particulate Matter*) désigne toutes les particules en suspension dans l'air de diamètre aérodynamique inférieur à 10  $\mu m$ . Ces particules sont particulièrement dangereuses pour l'Homme car elles ne sont pas filtrées par le nez ou la bouche lors de la respiration et pénètrent dans les poumons.

Les seuils en France sont issus, pour la plupart, de directives européennes (*cf.* Tableau 9-1).

<b>Objectif de qualité</b>	Moyenne annuelle	30 $\mu g.m^{-3}$
<b>Valeur limite</b>	Moyenne annuelle	40 $\mu g.m^{-3}$
	Moyenne journalière à ne pas dépasser plus de 35 jours par an	50 $\mu g.m^{-3}$
<b>Seuil d'information</b>	Moyenne journalière	50 $\mu g.m^{-3}$
<b>Seuil d'alerte</b>	Moyenne journalière	80 $\mu g.m^{-3}$

Tableau 9-1 : Seuils réglementaire en France des concentrations en  $PM_{10}$  (Air PACA)

### 9.2.2 Les cartes prévisionnelles et d'observation des $PM_{10}$

#### a. PREV'AIR

Le système PREV'AIR, crée en 2003 par le Ministère de l'Ecologie, du Développement et de l'Aménagement Durables (MEDAD), résulte d'une collaboration entre l'INERIS, l'ADEME, Météo France et plusieurs laboratoires du CNRS dans l'objectif d'étudier l'impact sanitaire et environnemental de l'ozone, du dioxyde d'azote et des particules d'aérosol (désertique,  $PM_{10}$  et  $PM_{2.5}$ ).

PREV'AIR génère, diffuse et archive sous forme de base de données des cartes quotidiennes de prévision et d'observation de la qualité de l'air à l'échelle de la France et de l'Europe (Figure 9-2). Les prévisions sont effectuées avec le modèle CHIMERE, décrit dans la section 2.6.1b. Les

observations sont issues des différentes stations des Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA).

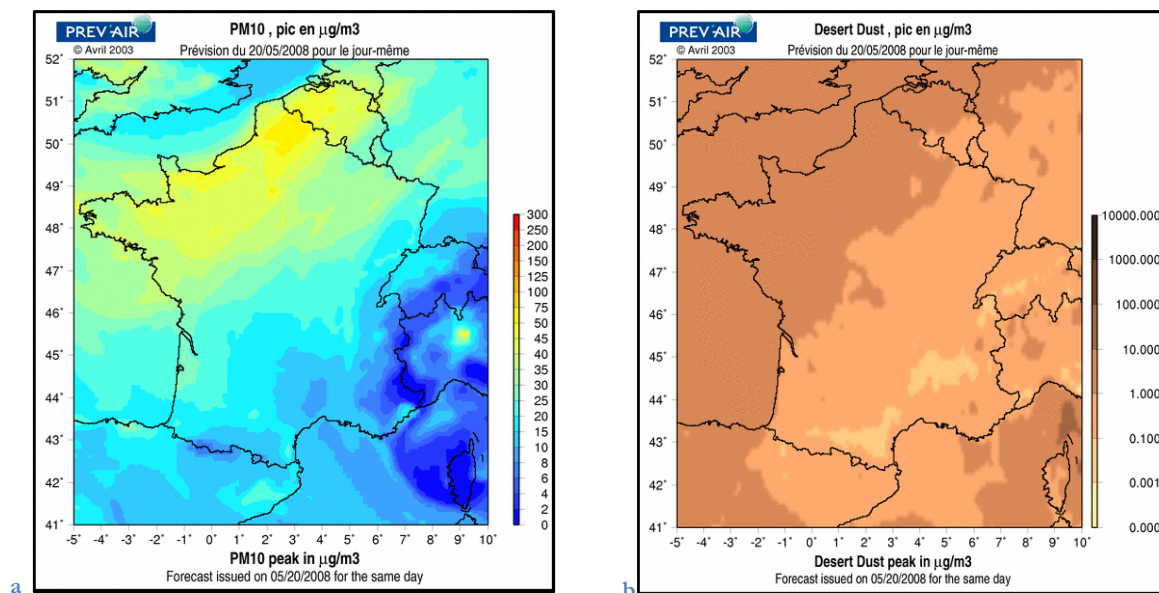


Figure 9-2 : Pic de  $\text{PM}_{10}$  (a) et de poussières désertiques (b) le 20 mai 2008 (PREV'AIR)

## b. Centre de recherche météorologique de l'Université de Tel-Aviv

Le centre de recherche développe et améliore des modèles atmosphériques pour la prévision météorologique, climatique et la qualité de l'air (poussières désertiques et aérosols marins), destinés à la recherche et aux applications semi-opérationnelles.

Le centre fournit des prévisions opérationnelles quotidiennes de la concentration surfacique en masse des aérosols marins dans l'atmosphère calculées par le modèle DREAM-SALT (cf. section 2.6.2a) pour le bassin méditerranéen.

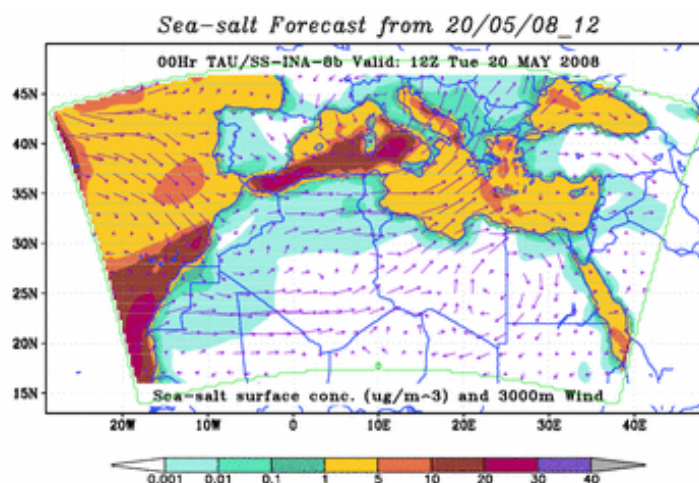


Figure 9-3 : Concentration à la surface marine d'aérosols marins (DREAM-SALT) le 20 (a) et le 21 (b) mai 2008

### 9.2.3 Modélisation des $PM_{10}$ avec MACMod

Le modèle MACMod fournit la concentration en fonction de la taille des particules. Il est donc nécessaire de convertir les distributions en  $PM_{10}$  par la formulation suivante :

$$PM_{10} = \int_0^5 \rho_p \frac{4}{3} \pi r_d^3 \frac{dN}{dr_{80}} dr_{80} \quad (9-1)$$

Les  $PM_{10}$  sont par définition des particules inférieures à 10  $\mu m$  en diamètre, soit un rayon de 5  $\mu m$ . Cependant, ils sont généralement déshydratés avant d'être pesés, d'où le volume de particules déterminé en fonction du rayon sec. Les simulations sont effectuées pour un minimum de 10 rayons de particules (0.1, 0.3, 0.5, 0.8, 1, 1.5, 2, 2.5, 3 et 5  $\mu m$ ) puis la procédure *pm10conv.m* convertit en  $PM_{10}$ .

## 9.3 Evaluation de la concentration en $PM_{10}$ à l'aide de MACMod

L'objectif est d'évaluer MACMod pour la prévision des  $PM_{10}$ . Les sorties du modèles sont alors comparées aux cartes générées par PREV'AIR et le centre de recherche météorologique de Tel-Aviv, ainsi qu'à des mesures effectuées dans la baie de Toulon-Hyères durant la campagne MIRAMER.

Les mesures effectuées à la station de Porquerolles et sur le navire Atalante sont converties en  $PM_{10}$ . Nous sélectionnons 9 séries de données correspondant à des conditions météorologiques différentes regroupées dans le Tableau 9-2. Les séries de mesures acquises sur le navire correspondent à des durées d'une trentaine de minutes environ. Sur Porquerolles, les mesures ont été moyennées sur la journée et sur une période de deux heures correspondant au pic de concentration en particules. Les cartes fournies par PREV'AIR (CHIMERE) sont des valeurs moyennées sur la journée ou des valeurs pics. DREAM-SALT donne des estimations de la concentration toutes les 6h. Les simulations MACMod ont été effectuées dans les conditions similaires aux conditions de mesures de l'Atalante.

Le Tableau 9-2 regroupe les différentes valeurs de  $PM_{10}$  mesurées et calculées par les modèles CHIMERE (fournies par PREV'AIR), DREAM-SALT (fournies par l'Université de Tel-Aviv) et MACMod utilisant la fonction source de Demoisson et al. (2013). Notons que CHIMERE prend en compte l'ensemble des sources continentales (naturelles ou anthropiques), désertiques et marines, DREAM-SALT et MACMod uniquement les sources marines. Les stations de mesures

de l'Atalante étant à plusieurs dizaines de kilomètre des côtes, les sources de particules sont donc essentiellement marines, particulièrement par vent fort où la dispersion est importante.

Date (mai 2008)	Vent (m.s <sup>-1</sup> )	Fetch (km)	Stations Atalante	Porquerolles		CHIMERE		DREAM- SALT	MACMod
				Moy	Pic	Moy	Pic		
18	15h45 19h25	11.8 10.3	300 320	14 10		4-6	15-20	1-5	16 18
19	7h	8.7	50	16		6-10	10-15	1-5	11
21	15h30	9.8	350	10	203 229	6-8	10-15	1-5	12
22	7h10	4.6	130	5	154 232	8-10	10-15	1-5	3 5 7
	13h	5.7	170	7					
	17h50	6.2	200	6					
27	12h10	19	30	11		45-75	50-75	20-30 (12 h)	11
	15h15	27.8	20	14				5-10 (18 h)	23

**Tableau 9-2 : PM<sub>10</sub> mesurés durant la campagne MIRAMER (conversion distribution en PM<sub>10</sub>) comparés aux prévisions de PREV'AIR, au modèle DREAM-SALT et aux simulations MACMod.**

Nous constatons que les mesures effectuées à Porquerolles sont très supérieures aux autres valeurs, d'un facteur 20 environ, en raison du surplus de production local (cf. section 5.3.2). Les concentrations calculées par MACMod sont très proches des mesures de l'Atalante. Ces résultats étaient attendus car ils sont équivalents à l'étude menée sur les distributions de particules dans la section 6.4.

DREAM-SALT tend à sous-estimer la concentration mesurée. Nous pouvons supposer que sa faible résolution (0.3°, environ 33 km) est à l'origine de ces résultats. De plus, les stations de mesures sont à proximité des côtes (entre 10 et 100 km), ce qui correspond aux frontières du domaine de calculs en termes de production marine.

La tendance entre les sorties du modèle CHIMERE et les mesures sont très variables. Les 18, 19 et 21 mai, les mesures sont plus proches des valeurs pics. En effet, les mesures ont été effectuées en pleine mer durant les périodes de vents les plus forts de la journée, où la production en particules marines est maximale. Lors de l'épisode de vent fort du 27 mai, CHIMERE surestime fortement les mesures de l'Atalante (facteur 5). En effet, le vent orienté est-sud-est correspond à des fetches de plusieurs centaines de kilomètres dans la baie de Toulon et de Marseille. Cependant, durant l'acquisition des données, le bateau était abrité par le cap Sicié en raison de la forte houle. Les mesures se sont donc effectuées dans des conditions de fetches courts. Or, les simulations CHIMERE possèdent une résolution de plusieurs kilomètres, les effets locaux sont donc peu pris en compte et les valeurs de PM<sub>10</sub> relevées correspondent à des fetches longs. C'est pourquoi, dans ce cas-ci, nous observons de fortes différences de concentration entre les mesures et CHIMERE. Suivant les cas étudiés, il est nécessaire d'utiliser des modèles locaux pour compléter les informations fournies par les modèles à plus grande échelle.

## 9.4 Synthèse

L'objectif principal de ce chapitre était d'évaluer MACMod en tant que modèle de prévision de la qualité de l'air en termes de  $PM_{10}$ . Des mesures effectuées durant la campagne MIRAMER près des côtes provençales (entre 10 et 100 km), ont été comparées aux concentrations de  $PM_{10}$  calculées par les modèles CHIMERE (PREV'AIR), DREAM-SALT et MACMod.

La performance de DREAM-SALT a été démontrée par Kishcha et al. (2011), lors de comparaison entre des mesures effectuées à Lampedusa et les sorties du modèle dans des conditions de pleine mer. Dans le cas de notre étude, le modèle possède une résolution trop faible et les mesures sont effectuées à proximité des côtes, soit aux frontières du domaine. Le modèle peut sous-estimer d'un facteur supérieur à 3 les mesures. Le modèle CHIMERE (PREV'AIR) fournit des estimations de la concentration en  $PM_{10}$  très proches des mesures. Cependant, le modèle possédant une résolution de plusieurs kilomètres, il ne prend pas en compte les effets locaux. Quant au modèle MACMod, nous observons les mêmes résultats que lors de l'étude des distributions de la section 7.3 (mêmes mesures), c'est-à-dire, ses sorties sont très proches des mesures. Par conséquent, les concentrations calculées par MACMod sont également proches de CHIMERE en l'absence d'effets locaux.

Pour compléter l'étude, il aurait été intéressant de comparer les modèles avec d'autres mesures de  $PM_{10}$  acquises en mer. D'un côté cela aurait permis de comparer directement des  $PM_{10}$  entre eux et donc de réduire les erreurs dues aux formules de conversions. D'un autre côté, nous aurions pu vérifier si MACMod fonctionnait aussi bien dans d'autres cas.





# Conclusion générale & Perspectives

Bien que le rôle majeur joué par les aérosols atmosphériques dans de nombreux processus physico-chimiques de la couche limite atmosphérique soit reconnu (IPCC, 2013), il est encore difficile de fournir une estimation fiable de leur influence sur l'évolution du climat. Ceci est en partie due à de grandes variations spatio-temporelles du fait de leurs origines diverses (naturelles et/ou anthropiques), de leur transport et des transformations qu'ils subissent durant leur parcours. En zone méditerranéenne les sources d'aérosols sont multiples (mer, poussières désertiques, transport, industries, agriculture, *etc.*). De plus, le fort ensoleillement ainsi que la présence de sels marins dans une atmosphère polluée favorisent également une pollution photochimique importante. La connaissance de la source et du transport des aérosols marins en Méditerranée représente un enjeu important dans la surveillance de la qualité de l'air et des modèles climatiques.

L'objectif principal de cette étude était d'approfondir nos connaissances concernant les processus de génération et de transport des aérosols marins en zone côtière méditerranéenne et d'améliorer les performances du modèle de transport MACMod (Marine Atmospheric Concentration Model) développé au laboratoire MIO.

Dans un premier temps, les performances de MACMod ont été évaluées à partir de mesures expérimentales acquises durant la campagne MIRAMER en mai 2008. Les simulations effectuées à l'aide de MACMod pour différents cas ont permis de mettre en évidence l'importance des flux de dépôt et surtout de production marine. L'amélioration du modèle MACMod a consisté dans un premier temps à réévaluer le flux de production primaire de l'aérosol marin. Pour ce faire, nous avons d'abord étudié l'influence des différents paramètres météorologiques et océanographiques sur la concentration en aérosols mesurée dans la CLAM lors de la campagne MIRAMER. Notre analyse a permis de mettre en évidence l'influence des caractéristiques du champ de vagues sur la production des particules marines. La fonction source caractéristique de la région méditerranéenne nord-occidentale a ensuite été déterminée à partir d'une méthodologie originale basée sur l'implémentation du modèle MACMod sur la zone d'étude grâce aux données acquises durant la campagne MIRAMER. La nouvelle fonction dérive du modèle de Monahan et al. (1986). Elle différencie les gouttelettes issues de l'éclatement des bulles à l'interface air-mer, les gouttes de jet et les gouttes de film, et prend en compte les caractéristiques du champ de vagues dans le taux de déferlement  $W$ , écrit en fonction de l'âge des vagues. La nouvelle fonction source (Demoisson et al., 2013) a été ensuite validée à partir de données acquises pour différentes

conditions météo-océanographiques (fetch de 20 à 350 km et vent de 4 à 28 m.s<sup>-1</sup>). Le rapport entre les concentrations mesurées et calculées par MACMod est réduit à 3 (facteur de confiance 68%) dans la gamme de taille 0.5-5 µm, alors qu'il était de l'ordre de 10 dans la configuration d'origine. Par ailleurs, des comparaisons ont été effectuées entre les calculs du modèle et les distributions volumiques intégrées sur la verticale fournies par le réseau AERONET de 7 stations en Méditerranée (Palma de Mallorca, Lampedusa, Erso, Oristano, Messine, Porquerolles et le Frioul). Les résultats obtenus montrent que MACMod fournit une estimation correcte de la quantité d'aérosols dans une colonne d'air.

Le modèle MACMod permet donc des prédictions de concentration en aérosols marins de bonne qualité pour la gamme de taille 0.5-5 µm dans des conditions météo-océanographiques étendues. Cependant, lors de vent offshore ou de fetch court, des particules de source autre que marine peuvent être implicitement prises en compte dans les distributions granulométriques (MIRAMER) ayant permis d'établir la fonction source. C'est pourquoi, nous avons étudié la composition chimique des aérosols pour des conditions de vent variables (conditions côtières, Mistral et conditions méditerranéennes) mesurées lors de la campagne Porquerolles 2007 (Piazzola et al. 2013; Piazzola et al. 2012; Sellegri et al. 2001). Ceci a d'abord confirmé que la contribution marine dans les échantillons d'aérosols dépend essentiellement de l'origine des masses d'air et de l'intensité du vent. Par Mistral, le fort vent disperse les particules continentales et génère des particules marines malgré les fetches courts. Lors de vents côtiers, généralement faibles, les masses d'air se chargent en particules continentales avant de survoler l'île de Porquerolles. La composante marine est alors faible. Les masses d'air circulant en Méditerranée (fetch long) se chargent en particules marines mais également en particules anthropiques et terrigènes originaires du Golfe de Gênes. Le transport sur des longues distances de particules favorise les réactions avec les autres composés de l'atmosphère, nous observons alors une déchloronisation des sels de mer. Des simulations avec MACMod ont été effectuées pour ces trois conditions de mesures. Les sorties du modèle ont été converties en concentrations massiques et comparées aux masses totales et aux masses de sels marins des échantillons mesurés. Nous avons montré que MACMod surestime la concentration en sels de mer et estime correctement les concentrations en aérosols marins puisqu'il semble peu tenir compte des composantes terrigènes et/ou anthropiques des aérosols submicroniques. Pour prendre en compte les particules de source terrigène et/ou anthropique dans le modèle, il est nécessaire de poser les conditions aux frontières en l'initialisant avec un profil vertical de concentration en aérosols à l'entrée du domaine de calcul. Le profil vertical est spécifique à la source des particules étudiées et aux conditions météorologiques.

Nous avons souhaité évaluer les performances de MACMod dans des conditions purement marines. Pour ce faire, une comparaison des calculs du modèle avec des mesures acquises sur la côte de l'île de La Réunion a été mise en place. Les résultats obtenus montrent des performances correctes avec la nouvelle fonction source (facteur de confiance à 68 % inférieur à 3 dans la gamme 0.5-5 µm). De plus, grâce à cette étude nous avons mis en place le couplage MACMod-

MEDEX-Réunion qui permet de modéliser le transport en initialisant le modèle avec un profil d'entrée déterminée à l'aide de MEDEX-Réunion. Cependant, le choix du profil reste difficile puisqu'il varie en fonction des conditions météorologiques au moment de l'étude et antérieures.

Un des objectifs de ce travail était également d'utiliser MACMod comme une aide dans l'étude de la qualité de l'air, notamment en évaluant la contribution marine dans les  $PM_{10}$ . Nous avons modifié le modèle pour que les concentrations en particules soient directement converties en concentration massique et en  $PM_{10}$  par le modèle. En comparant les  $PM_{10}$  calculés par MACMod aux sorties des modèles CHIMERE et DREAM-SALT et à des mesures (MIRAMER), nous avons montré que CHIMERE et DREAM-Salt ne prenaient pas en compte les effets locaux, contrairement à MACMod.

Même si nous avons mis en place un outil de modélisation fiable pour l'estimation de la concentration en aérosol marin, beaucoup de travail reste encore à effectuer tant les processus d'écoulement du vent, la stratification atmosphérique, l'interaction vent-vagues et le choix des conditions aux frontières sont complexes.

Une première perspective consiste à pouvoir tenir compte des différentes origines de particules et des transformations qu'elles subissent au cours de leur transport. MACMod étant limité à ce niveau-là, nous devons l'imbriquer dans une chaîne de modèles. C'est pourquoi, nous avons procédé à l'installation des modèles de chimie-transport CHIMERE et WRF-Chem au sein du laboratoire. La suite de ce travail consisterait donc à utiliser CHIMERE ou WRF-Chem comme condition d'entrée à MACMod. Par ailleurs, nous envisageons de faire tourner ces modèles de chimie-transport avec notre fonction source.

De plus, un deuxième axe de recherche serait intéressant à développer concernant la dynamique des aérosols. La description de l'interaction vent-vagues doit être améliorée dans MACMod. En effet, nous considérons un vent moyen le long du fetch. Il semble important d'avoir une meilleure description de l'écoulement au dessus des vagues déferlantes, notamment pour établir les profils d'humidité relative.

Enfin, dans le cadre de la qualité de l'air, il est nécessaire de développer un module appliqué à la zone terrestre. En effet, MACMod est un modèle purement marin ne prenant pas en compte l'orographie. Le couplage avec des modèles locaux spécifiques aux zones urbaines ou terrestres permettrait de mieux étudier la zone de transition terre-mer.



# Bibliographie

- Andreae, M.O., 1995. Climatic effects of changing atmospheric aerosol levels. *World survey of climatology*, 16, pp.347–398.
- Andreas, E.L., 2007. Comment on “Vertical coarse aerosol fluxes in the atmospheric surface layer over the North Polar Waters of the Atlantic” by Tomasz Petelski and Jacek Piskozub. *Journal of Geophysical Research*, 112(C11), p.C11010.
- Andreas, E.L., 2009. Relating the drag coefficient and the roughness length over the sea to the wavelength of the peak waves. *Journal of Physical Oceanography*, 39(11), pp.3011–3020.
- Angelova, M., Barber, R.P. & Wu, J., 1999. Spume Drops Produced by the Wind Tearing of Wave Crests. *Journal of Physical Oceanography*, 29, pp.1156–1165.
- Bergstrom, R.W. & Russell, P.B., 1999. Estimation of aerosol direct radiative effects over the mid-latitude North Atlantic from satellite and in situ measurements. *Geophysical research letters*, 26(12), pp.1731–1734.
- Blanchard, D. C., 1963. The electrification of the atmosphere by particles from bubbles in the sea. *Prog. Oceanogr. I*, pp.71–102.
- Blanchard, Duncan C, 1983. The production, distribution, and bacterial enrichment of the sea-salt aerosol. In *Air-sea exchange of gases and particles*. Springer, pp. 407–454.
- Blanchard, Duncan C. & Woodcock, A.H., 1980. THE PRODUCTION, CONCENTRATION, AND VERTICAL DISTRIBUTION OF THE SEA-SALT AEROSOL. *Annals of the New York Academy of Sciences*, 338(1 Aerosols), pp.330–347.
- Blot, R., 2009. *Etude et modélisation des variations spatio-temporelles des distributions d'aérosols en zone côtière méditerranéenne*.
- Businger, J.A. et al., 1971. Flux profile relationships in the atmospheric surface layer. *Journal of atmospheric sciences*, 28, pp.181–189.
- Carruthers, D.J. & Choularton, T.W., 1986. The microstructure of hill cap clouds. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 112(471), pp.113–129.
- Cavalli, F. et al., 2004. Advances in characterization of size-resolved organic matter in marine aerosol over the North Atlantic. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984--2012)*, 109(D24).

- Ceburnis, D., O'Dowd, C. D., Jennings, G. S., Facchini, M. C., Emblico, L., Decesari, S., ... & Sakalys, J. (2008). Marine aerosol chemistry gradients: Elucidating primary and secondary processes and fluxes. *Geophysical Research Letters*, 35(7).
- Clarke, A.D., Owens, S.R. & Zhou, J., 2006. An ultrafine sea-salt flux from breaking waves: Implications for cloud condensation nuclei in the remote marine atmosphere. *Journal of Geophysical Research*, 111(D6), pp.1–14.
- D'Albe, F., 1951. EM, Sur les embruns marins. *Bull. Inst. Oceanog*, 48(995), p.7.
- D'Almeida, G.A. et al., 1991. *Atmospheric aerosols: global climatology and radiative characteristics*, A. Deepak Pub. Hampton.
- Deardorff, J.W., 1968. Dependence of air-sea transfer coefficients on bulk stability. *Journal of geophysical research*, 73(8), pp.2549–2557.
- DeMoor, G., 1983. Les théories de la turbulence dans la couche-limite atmosphérique. In *Cours et Manuels n°3*.
- Donelan, M. a., Drennan, W.M. & Katsaros, Kristina B., 1997. The Air–Sea Momentum Flux in Conditions of Wind Sea and Swell. *Journal of Physical Oceanography*, 27(10), pp.2087–2099.
- Dyer, A.J., 1974. A review of flux-profile relationships. *Boundary-layer meteorology*, 7, pp.363–372.
- Edson, J.B. et al., 1996. Spray droplet modeling 2. An interactive Eulerian-Lagrangian model of evaporating spray droplets. *Journal of Geophysical Research*, 101(NO. C1), pp.1279–1293.
- Van Eijk, a. M.J. et al., 2011. Sea-spray aerosol particles generated in the surf zone. *Journal of Geophysical Research*, 116(D19), pp.1–20.
- Eriksson, E., 1959. The Yearly Circulation of Chloride and Sulfur in Nature; Meteorological, Geochemical and Pedological Implications. Part 1. *Tellus*, 11(4), pp.375–403.
- Fairall, C W & Davidson, K L, 1986. Dynamics and modeling of aerosols in the marine atmospheric boundary layer. In *Oceanic Whitecaps*. Springer, pp. 195–208.
- Fairall, C.W. & Davidson, K. L., 1983. An analysis of the surface production of sea-salt aerosols. *Tellus*, 35B, pp.31–39.
- Fitzgerald, J.W., 1975. Approximation formulas for the equilibrium size of an particle as a function of its dry size and composition and the ambient relative humidity. *Journal of Applied Meteorology*, 14, pp.1044–1049.
- Frouin, R., Iacobellis, S.F. & Deschamps, P.-Y., 2001. Influence of oceanic whitecaps on the global radiation budget. *Geophysical research letters*, 28, pp.1523–1526.
- Geernaert, G.L., Katsaros, Kristina B. & Richter, K., 1986. Variation of the Drag Coefficient and Its Dependence on Sea State. *Journal of Geophysical Research*, 91(C6), pp.7667–7679.

- Gong, S.L., 2003. A parameterization of sea-salt aerosol source function for sub- and super-micron particles. *Global Biogeochemical Cycles*, 17(4), pp.1–7.
- Gordon, H.R., 1997. Atmospheric correction of ocean color imagery in the Earth Observing System era. *Journal of Geophysical Research*, 102, pp.17,081–17,106.
- Goroch, A., Burk, S. & Davidson, Kenneth L., 1980. Stability effects on aerosol size and height distributions. *Tellus*, 32(3), pp.245–250.
- Grachev, A.A. & Fairall, C.W., 1997. Dependence of the Monin–Obukhov stability parameter on the bulk Richardson number over the ocean. *Journal of Applied Meteorology*, 36 (4), pp.406–414.
- Guan, C. & Xie, L., 2004. On the Linear Parameterization of Drag Coefficient over Sea Surface. *Journal of Physical Oceanography*, 34, pp.2847–2851.
- Guelle, W. et al., 2001. Influence of the source formulation on modeling the atmospheric global distribution of sea salt aerosol. *Journal of Geophysical Research*, 106(D21), pp.27509–27524.
- Hanson, J.L. & Phillips, O.M., 1999. Wind sea growth and dissipation in the open ocean. *Journal of physical oceanography*, 29(8), pp.1633–1648.
- Hellerman, S. & Roseinstein, M., 1983. Normal wind stress over the world ocean with error estimates. *Journal of Physical Oceanography*, 13, pp.1093–1104.
- Holgate, S.T. et al., 1999. *Air Pollution and Health*, Elsevier Science.
- Hoppel, W. a., 2002. Surface source function for sea-salt aerosol and aerosol dry deposition to the ocean surface. *Journal of Geophysical Research*, 107(D19), pp.1–17.
- Hsu, S A, 1986. Determination of wind stress (drag) coefficient for coastal waters under variable meteorological and oceanographic conditions. *Coastal Engineering Proceedings*, 1(20).
- Hsu, S.A., 1989. The relationship between the Monin–Obukhov stability parameter and the bulk Richardson number. *Journal of Geophysical Research*, 94, pp.8053–8054.
- Van de Hulst, H.C., 1981. Light Scattering by Small Particles. In New York.
- Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC), 2013. Climate Change 2013 - The Physical Science Basis: Working Group I Contribution to the Fifth Assessment Report of the IPCC.
- Jaenicke, R, 1984. Physical aspects of the atmospheric aerosol. In H. . Gerbard & A. Deepak, eds. *Aerosols and their climatic effects*. pp. 7–34.
- Jaenicke, Ruprecht, 1993. Tropospheric aerosols. In *Aerosol-cloud-climate interactions*. p. 1.
- Janssen, P., 1994. Wave growth by wind. In K. et Al., ed. *Dynamics and modelling of ocean waves*. Cambridge University Press, pp. 71–112.
- Keene, W.C. et al., 1998. Aerosol pH in the marine boundary layer:: A review and model evaluation. *Journal of Aerosol Science*, 29(3), pp.339–356.



- Kishcha, P. et al., 2011. Sea-salt aerosol forecasts compared with daily measurements at the island of Lampedusa (Central Mediterranean). *Atmospheric Research*, 100(1), pp.28–35.
- Knipping, E.M. & Dabdub, D., 2003. Impact of chlorine emissions from sea-salt aerosol on coastal urban ozone. *Environ. Sci. Technol.*, 37, pp.275–284.
- Koga, M., 1986. Characteristic features of a wind wave field with occasional breaking, and splashing droplets at high winds. In *Oceanic Whitecaps*. Springer, pp. 129–145.
- Koga, M., 1981. Direct production of droplets from breaking wind-waves—its observation by a multi-colored overlapping exposure photographing technique. *Tellus*, 33(6), pp.552–563.
- Kraan, C., Oost, W.A. & Janssen, P.A.E.M., 1996. Wave energy dissipation by whitecaps. , 13, pp.262–267.
- Kusmierczyk-Michulec, J., De Leeuw, G. & Moerman, M.M., 2007. Physical and optical aerosol properties at the Dutch North Sea coast based on AERONET observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, pp.3481–3495.
- Lafon, C. et al., 2004. Analysis of the variations of the whitecap fraction as measured in a coastal zone. *Boundary layer meteorology*, 111, pp.339–360.
- Lafon, C. et al., 2007. Whitecap coverage in coastal environment for steady and unsteady wave field conditions. *Journal of Marine Systems*, 66, pp.38–46.
- Large, W.G. & Pond, S., 1981. Open Ocean Momentum Flux Measurements in Moderate to Strong Winds. *Journal of Physical Oceanography*, 11, pp.324–336.
- Laskin, A. et al., 2003. Reactions at interfaces as a source of sulfate formation in sea-salt particles. *Science*, 301(5631), pp.340–344.
- De Leeuw, G., 1986. Size distributions of giant aerosol particles close above sea level. *Journal of Aerosol Science*, 17, pp.293–296.
- De Leeuw, Gerrit et al., 2003. 9.6 AEROSOLS, BUBBLES AND SEA SPRAY PRODUCTION STUDIES DURING THE RED EXPERIMENTS.
- De Leeuw, Gerrit et al., 2011. Production flux of sea spray aerosol. *Reviews of Geophysics*, 49(2), p.n/a–n/a.
- De Leeuw, Gerrit et al., 2000. Production of sea spray aerosol in the surf zone. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984--2012)*, 105(D24), pp.29397–29409.
- Lewis, R. & Schwartz, E., 2004. *Sea salt aerosol production: mechanisms, methods, measurements and models—a critical review*, American Geophysical Union.
- Mallet, M. et al., 2003. Microphysical and optical properties of aerosol particles in urban zone during ESCOMPTE. *Atmospheric Research*, 69(1), pp.73–97.

- Mårtensson, E.M. et al., 2003. Laboratory simulations and parameterization of the primary marine aerosol production. *Journal of Geophysical Research*, 108(D9), pp.1–12.
- Massel, S.R., 2007. *Ocean Waves Breaking and Marine Aerosol Fluxes* Springer., New York.
- Mestayer, P. & Lefauconnier, C., 1988. Spray droplet generation, transport, and evaporation in a wind wave tunnel during the Humidity Exchange over the Sea Experiments in the Simulation Tunnel. *Journal of Geophysical Research: Oceans (1978--2012)*, 93(C1), pp.572–586.
- Mestayer, P.G. & Tranchant, B., 1994. Modélisation du flux d'eau de l'océan vers l'atmosphère sous forme vapeur et liquide (embruns). In *Atelier de modélisation de l'atmosphère, Centre International de Conférence de Météo France*. Toulouse: Volumes d'actes, pp. 179–186.
- Miche, A., 1944. Mouvements ondulatoires de la mer en profondeur croissante ou décroissante. Forme limite de la houle lors de son développement. Application aux digues maritimes. Deuxième partie. Mouvements ondulatoires périodiques en profondeur. *Annales des Ponts et Chaussées*.
- Michell, J.H., 1893. XLIV. The highest waves in water. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 36(222), pp.430–437.
- Middlebrook, Ann M, Murphy, Daniel M & Thomson, David S, 1998. Observations of organic material in individual marine particles at Cape Grim during the First Aerosol Characterization Experiment (ACE 1). *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984--2012)*, 103(D13), pp.16475–16483.
- Monahan, E.C. & O Muirheartaigh, I., 1980. Optimal Power-Law of Oceanic Whitecap Coverage Dependence on Wind Speed. *Journal of Physical Oceanography*, 10, pp.2094–2099.
- Monahan, E.C., Spiel, D.E. & Davidson, K.L., 1986. A model of marine aerosol generation via whitecaps and wave disruption. In E.C. Monahan & G. MacNiocaill, eds. *Oceanic Whitecaps and Their Role in Air–Sea Exchange Processes*. Norwell: D. Reidel, pp. 167–174.
- Monahan, Edward C et al., 1983. Observed inter-relations between 10m winds, ocean whitecaps and marine aerosols. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 109(460), pp.379–392.
- Monahan, Edward C & O Muirheartaigh, I., 1986. Whitecaps and the passive remote sensing of the ocean surface. *International Journal of Remote Sensing*, 7(5), pp.627–642.
- Monahan, Edward C & Woolf, D.K., 1989. Comments on “Variations of whitecap coverage with wind stress and water temperature. *Journal of physical oceanography*, 19(5), pp.706–709.
- Monin, A.S. & Obukhov, A.M., 1954. “Osnovnye zakonomernosti turbulentnogo peremeshivaniya v prizemnom sloye atmosfery (Basic Laws of Turbulent Mixing in the Atmosphere Near the Ground)”. *Trudy geofiz. inst. AN SSSR* 24, Trudy geof, pp.163–187.

- Mozurkewich, M., 1995. Mechanisms for the release of halogens from sea-salt particles by free radical reactions. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984--2012)*, 100(D7), pp.14199–14207.
- Mulcahy, J.P. et al., 2008. Significant enhancement of aerosol optical depth in marine air under high wind conditions. *Geophys. Res. Lett.*, 35(L16810).
- Munk, W.H., 1949. The solitary wave theory and its application to surf problems. *Annals of the New York Academy of Sciences*, 51(3), pp.376–424.
- Murphy, D M et al., 1998. In situ single-particle characterization at Cape Grim. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984--2012)*, 103(D13), pp.16485–16491.
- Murphy, D M, Thomson, D S & Middlebrook, A M, 1997. Bromine, iodine, and chlorine in single aerosol particles at Cape Grim. *Geophysical Research Letters*, 24(24), pp.3197–3200.
- Nickovic, S. et al., 2007. Model for simulation of the sea salt aerosol atmospheric cycle. *Research activities in Atmospheric and Oceanic Modelling, WMO, Geneva, CAS/JSC WGNE, sect*, 20, pp.19–20.
- O'Brien, J.J., 1970. A note on the vertical structure of the eddy exchange coefficient in the planetary boundary layer. *Journal of atmospheric sciences*, 27(1213-1215).
- O'Dowd, C.D. et al., 2004. Biogenically driven organic contribution to marine aerosol. *Nature*, 431, pp.676–680.
- O'Dowd, Colin D & De Leeuw, Gerrit, 2007. Marine aerosol production: a review of the current knowledge. *Philosophical transactions. Series A, Mathematical, physical, and engineering sciences*, 365(1856), pp.1753–74.
- Panofsky, H.A. & Dutton, J.A., 1984. *Atmospheric turbulence: models and methods for engineering applications*, Wiley.
- Patankar, S.V. & Spalding, D.B., 1972. A calculation procedure for heat, mass and momentum transfer in three-dimensional parabolic flows. *J. Heat Mass Transfer*, 15, pp.1787–1806.
- Piazzola, J, Demoisson, A. & Tedeschi, G., 2013. Transport of aerosols in the Mediterranean coastal zone. *Air Pollution XXI*, 174, p.125.
- Piazzola, J. et al., 2012. Physicochemical characteristics of aerosols measured in the spring time in the Mediterranean coastal zone. *Atmospheric Environment*, 54, pp.545–556.
- Piazzola, J. & Kaloshin, G., 2005. Performance evaluation of the coastal aerosol extinction code “MEDEX” with data from the Black Sea. *Journal of Aerosol Science*, 36(3), pp.341–359.
- Piazzola, Jacques et al., 2003. Development of the Mediterranean extinction code (MEDEX). *Optical Engineering*, 42(4), pp.912–924.

- Piazzola, Jacques et al., 2009. Spatial variation of sea-spray fluxes over a Mediterranean coastal zone using a sea-state model. *Boundary-layer meteorology*, 132(1), pp.167–183.
- Preobrazhenskii, L., 1973. Estimate of the content of spray-drops in the near-water layer of the atmosphere. *Fluid Mech. Sov. Res.*
- Prodi, F., Santachiara, G. & Oliosì, F., 1983. Characterization of aerosols in marine environments (Mediterranean, Red Sea, and Indian Ocean). *Journal of Geophysical Research: Oceans* (1978--2012), 88(C15), pp.10957–10968.
- Reid, J.S. et al., 2001. Evolution of the vertical profile and flux of large sea-salt particles in a coastal zone. , 106(2000), pp.39–53.
- Resch, F., 1982. Air sea particulates exchanges in coastal region. In *First International Conference on Meteorology and air sea interaction of the coastal zone*. pp. 54–57.
- Resch, F.J., Darrozes, S.J. & Afeti, G.M., 1986. Marine liquid aerosol production from bursting of air bubbles. *Journal of Geophysical Research*, 91, pp.1019–1029.
- Rouse, H., 1937. Modern Conceptions of the Mechanics or Fluid Turbulence. *Transactions of the American Society of Civil Engineers*, 102(1), pp.463–505.
- Sander, R. & Crutzen, P.J., 1996. Model study indicating halogen activation and ozone destruction in polluted air masses transported to the sea. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (1984--2012), 101(D4), pp.9121–9138.
- Sellegri, Karine, Gourdeau, J. & Despiiau, Serge, 2001. Chemical composition of marine aerosol in a Mediterranean coastal zone during the FETCH experiment Jean-Philippe. , 106(D11).
- Smith, M H, Park, P M & Consterdine, I E, 1991. North Atlantic aerosol remote concentrations measured at a Hebridean coastal site. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 25(3), pp.547–555.
- Smith, M. H., Park, P. M. & Consterdine, I. E., 1993. Marine aerosol concentrations and estimated fluxes over the sea. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 119(512), pp.809–824.
- Smith, S.D. et al., 1992. WIND STRESS AND DRAG COEFFICIENTS : *Boundary layer meteorology*, 60, pp.109–142.
- Sofiev, M. et al., 2011. A regional-to-global model of emission and transport of sea salt particles in the atmosphere. *Journal of Geophysical Research*, 116(D211302), pp.1–25.
- Stull, R.B., 1988. *An Introduction to Boundary Layer Meteorology* Dordrecht,,
- Tang, C.C.H., 1974. The Effect of Droplets in the Air-Sea Transition Zone on the Sea Brightness Temperature. *Journal of Physical Oceanography*, 4, pp.579–583.

- Tang, I.N., Tridico, A.C. & Fung, K.H., 1997. Thermodynamic and optical properties of sea salt aerosols. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984--2012)*, 102(D19), pp.23269–23275.
- Tedeschi, G. & Piazzola, J., 2011. Development of a 2D marine aerosol transport model: Application to the influence of thermal stability in the marine atmospheric boundary layer. *Atmospheric Research*, 101(1-2), pp.469–479.
- Ting, C.-H. et al., 2012. Dependence of drag coefficient on the directional spreading of ocean waves. *Journal of Geophysical Research*, 117(null), p.C00J14.
- Toba, Y., 1965. On the giant sea-salt particles in the atmosphere 11. Theory of the Vertical Distribution in the 10-m Layer Over the Ocean. *tellus XVII*, 3, pp.365–382.
- Toba, Y. et al., 1990. Wave dependance of sea-surface wind stress. *Journal of Physical Oceanography*, 20, pp.705–721.
- Toledano, C. et al., 2007. Aerosol optical depth and Angström exponent climatology at El Arenosillo AERONET site ( Huelva , Spain ). *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 133, pp.795–807.
- Troen, I. & Mahrt, L., 1986. A Simple Model of the Atmospheric Boundary Layer: Sensitivity to Surface Evaporation. *Boundary-Layer Meteorology*, 37, pp.129–148.
- Vignati, E., De Leeuw, Gerrit & Berkowicz, R., 2001. Modeling coastal aerosol transport and effects of surf-produced aerosols on processes in the marine atmospheric boundary layer. *Journal of Geophysical Research*, 106(NO. D17), pp.20,225–20,238.
- Warneck, P. & Wurzinger, C., 1988. Product quantum yields for the 305-nm photodecomposition of nitrate in aqueous solution. *The Journal of Physical Chemistry*, 92(22), pp.6278–6283.
- Whitby, K.T., 1978. The physical characteristics of sulfur aerosols. *Atmospheric Environment (1967)*, 12(1), pp.135–159.
- Woolf, D.K., Bowyer, P.A. & Monahan, Edward C., 1987. Discriminating between the film drops and jet drops produced by a simulated whitecap. *Journal of Geophysical Research*, 92(C5), p.5142.
- Wu, J., 2001. Production Functions of Film Drops by Bursting Bubbles. *Journal of Physical Oceanography*, 31(1988), pp.3249–3257.
- Wu, J., 1988. Variations of whitecap coverage with wind stress and water temperature par Wu.pdf. *Journal of Physical Oceanography*, 18, pp.1448–1453.
- Wu, J., 1980. Wind-stress coefficients over sea surface near neutral conditions—A revisit. *Journal of Physical Oceanography*, 10, pp.727–740.
- Yoon, Y J et al., 2007. Seasonal characteristics of the physicochemical properties of North Atlantic marine atmospheric aerosols. *Journal of geophysical research*, 112(D4), p.D04206.

Zaitsev, Y. & Liss, P., 1997. Neuston of seas and oceans. *The sea surface and global change*, 371, p.382.



## Annexe 1 : Expression de la fraction de couverture moutonneuse

Auteurs	$\alpha$	$\lambda$	Lieux de mesures
<b>W(ppm) = <math>\alpha</math> U<sub>10</sub><sup><math>\lambda</math></sup> (m/s)</b>			
Monahan & O’Muircheartaigh (1980)	3,84.10-6	3,41	Golfe d’Alaska
	2,95.10-6	3.52	
Marks (1987)	2,54.10-6	3,58	
Wu (1988)	1,7.10-6	3,75	
Hanson & Phillips (1999)	2,04.10-7	3.61	
<b>W(ppm) = <math>\alpha</math> U*<math>\lambda</math> (cm/s)</b>			
Wu (1988)	0.2	3	
<b>W(ppm) = <math>\alpha</math>( U<sub>10</sub>-<math>\beta</math>)<sup><math>\lambda</math></sup> (cm/s)</b>			
	$\alpha$	$\beta$	$\lambda$
Stramska & Peleski (2003)	4,18.10-5	3	4,93
<b>W(ppm) = <math>\alpha</math>( U*-<math>\beta</math>)<sup><math>\lambda</math></sup> (cm/s)</b>			
Stramska & Peleski (2003)	8,85.10-7	3	15.34
<b>W(ppm) = <math>\alpha</math>E<sub>diss</sub><sup><math>\lambda</math></sup></b>			
Hanson & Phillips (1999)	3,4.10-3	1,5	
<b>W=f(X,U<sub>10</sub>)</b>			
Massel (2007)	$W = \exp\left(-0.587 \times \left(\frac{gX}{U_{10}^2}\right)^{0.22}\right)$		



## Annexe 2 : Récapitulatif des différentes méthodes de détermination du flux de production d'aérosols marins

Méthode	Flux	Ordre de grandeur r80 (µm)	Type de gouttes	Mesures requises	Facteur d'incertitude
Steady state dry deposition	Efficace	3-25	Jet	Distribution en taille des particules Vitesse de dépôt sec	3 2
Whitecap	Interfacial	≤10	Film, Jet	Ratio whitecap Flux de production en fonction de la taille des particules par unité de surface de whitecap	7 3-7
Concentration buildup	Efficace	≤10	Film, Jet	Distribution en taille en fonction du fetch et de la hauteur	-
Bubble	Interfacial	≤100	Film, Jet	Nombre de gouttes par bulle Distribution en taille des bulles Vitesse d'ascension des bulles	2 14 2
Micrometeorological	Efficace	≤10	Film	Distribution en nombre Flux vertical à 10 m en fonction de la taille	-
Along-wind flux	Interfacial	≥50	Jet, Spume (Film)	Flux près de la surface en fonction du fetch et de la taille des particules Distance horizontale moyenne de transport en fonction de la taille des particules	-
Direct observation	Interfacial	≥500	Spume	Comptage par vidéo ou photo	-
Vertical impaction	Interfacial	≥250	Jet, Spume	Flux vertical près de la surface	-
Statistical wet deposition	Efficace	≤1	Film, Jet	Distribution en taille Temps moyen entre les précipitations Hauteur de la CLAM	4 2 2

## **Annexe 3 : Exemple de fonctions sources**

Référence	Méthode	Formulation	Domaine de validité		
			Taille (µm)	Vent (m.s <sup>-1</sup> )	Temp eau (°C)
Monahan et al (1986)	Whitecap	$\frac{dF}{dr} = 1.373U^{3.41} \times r^{-3} \times (1 + 0.057r^{1.05}) \times 10^{1.19e^{-B^2}}$ <p>Avec <math>B = (0.38 - \log r)/0.65</math></p>	r80≈ 0.3-20	-	≈20
Smith et al (1993)	Steady state dry deposition	$\frac{dF}{dr} = \sum_{i=1,2} A_i \exp \left[ -f_i \left( \ln \frac{r}{r_{0i}} \right)^2 \right]$ <p>f1=3.1, f2=3.3, r01=2.1µm, r02=9.2 µm</p> <p>log A1 = 0.0676U+2.43, log A2 = 0.0959U<sup>1/2</sup>-1.476</p>	r80≈ 1-25	< 34	-
Wu (1993)	Along-wind flux	$\frac{dF}{dr} = \begin{cases} 9.06 \times 10^{-1} \times r^{-1} \times F \\ 5.10 \times 10^3 \times r^{-3} \times F \\ 3.87 \times 10^{14} \times r^{-8} \times F \end{cases}$ <p>Avec <math>F = 8.7 \times 10^{-5} \times e^{0.875 \times U_{10}}</math></p>	r0≈37.5-75 r0≈75-150 r0≥150	-	-
De Leeuw (2000)	Whitecap (zone de surf)	$\frac{dF}{dD} = 1.1 \times e^{0.23 \times U_{10}} \times D^{-1.65} \times W \quad (1)$ $\frac{dF}{dD} = a \times D^b \quad (2)$	D0≈1.6-20	0-9 (1) -	≈16
Nilsson et al (2001)	Micrometeo./corrél ation turbulente	$\frac{dF}{dr} = 1.9 \times 10^4 \exp(0.46 U_{10})$	D≥ 0.01	4-13	-

Vignati et al. (2001)	Model/Field (surf zone)	$\frac{dF}{d \log r} = \sum_{i=1,3} \frac{N_i}{\sqrt{2\pi} \log \sigma_i} \exp \left[ - \left( \frac{\log r - \log R_i}{2(\log \sigma_i)^2} \right)^2 \right]$			
		$N1=10(0.095U+0.283)$ , $R1=0.2\mu m$ et $\sigma1=1.9$ $N2=10(0.0422U+0.288)$ , $R2=2\mu m$ et $\sigma2=2$ $N3=10(0.069U-3.5)$ , $R3=12\mu m$ et $\sigma3=3$			
Hoppel (2002)	Steady state dry deposition	$\frac{dF}{dr} = \frac{V_g}{f_{ref}} \times \frac{dN}{dr}$			
		Avec $z_{ref} = \left( \frac{\delta}{z_{ref}} \right)^{\frac{V_g}{X}}$ et $V_g = \left( \frac{\rho g D^2}{18\eta} \right)$			
De Leeuw et al. (2003)	Model/Field	$\frac{dF}{dr} = c \sum_{i=1}^2 A_i e^{-c_i \times \ln(r_1/r_2)^2}$			
		$A1=1.41u+0.98$ ; $A2=0.51u-1.82$ $C1=-0.1u+1.69$ ; $C2=1.09$ et $c=(0.24u+0.4) \times 10^4$			
Gong et al. (2003)	Whitecap/ Monahan modifié	$\frac{dF}{dr} = 1.373U^{3.41} \times r^{-A} \times (1 + 0.057r^{3.45}) \times 10^{1.607e^{-B^2}}$			
		$A = 4.7(1 + \Theta r)^{-0.017r^{-1.44}}$ et $B = \frac{0.433 - \log r}{0.433}$ $\Theta$ est un paramètre ajustable contrôlant la forme de la distribution en taille des particules			

Martensson et al. (2003)	Whitecap	$\frac{dF}{d \log Dp} = W(A_k T + B_k)$			Dd≈0.02-2.8	-	-2-25
		$A_k=c_4Dp^4 + c_3Dp^3 + c_2Dp^2 + c_1Dp + c_0$ $B_k = d_4Dp^4 + d_3Dp^3 + d_2Dp^2 + d_1Dp + d_0$					
Lewis et Schwartz (2004)	Statistical Deposition	Wet	$\frac{dF}{d \log r} = H_{CLAM} \times n(r_{80})/\tau_{wet}$			r80≈ 0.1-1	
Geever et al. (2005)	Micrometeorologica l/corrélation turbulente		$F = \begin{cases} 1.9 \times 10^5 \exp(0.23 U_{10}) & (a) \\ 6.5 \times 10^4 \exp(0.25 U_{10}) & (b) \end{cases}$			D≈0.1-1 ramb≈0.005-0.5	4-17 7-18 -
Clarke et al. (2006)	Whitecap (zone de surf)		$\frac{dF}{d \log Dp} = W \sum_{i=1}^3 A_i$ $A_i = \beta_0 + \beta_1 D_p + \beta_2 D_p^2 + \beta_3 D_p^3 + \beta_4 D_p^4 + \beta_5 D_p^5$			Dd≈0.01-8	≈25
Petelski & Piskozub (2006)	Steady state dry deposition		$\frac{dF_{eff}}{d \log r_{80}} = \frac{(70 \exp(0.21 \times U_{10}) r_{80}^3 \exp(-0.5 r_{80}))}{1 - \exp \frac{-0.11 r_{80}^2}{U_{10}}}$			r80≈ 0.25-7.5	<17
	Micrometeo./gradient		$\frac{dF}{d \log r} = 1.2 \times 10^3 \exp[0.52 U_{10} - (0.05 U_{10} + 0.64) r_{amb}]$ $\times r_{amb}$			-	-
Andreas et al. (2007)			$\frac{dF}{dr} = 0.4 \exp(r_{80}(0.52 U_{10} + 0.64))$				

Norris et al. (2008)	Micrometeo. /corrélation turbulente	$\frac{dF}{dr} = a_0 \exp(a_1 U_{10})$			
Sofiev et al. (2011)	effectif	$\frac{dF}{dD_p} = W T_W S_W 10^6 \left( \frac{\exp\left(-\frac{0.09}{D_p + 3.10^{-3}}\right)}{2 + \exp\left(-\frac{5}{D_p}\right)} \right)$ $\cdot \frac{1+0.05D_p^{1.05}}{D_p^3} \cdot 10^{(1.05 \exp\left(-\left(\frac{0.27+\log D_p}{1.1}\right)^2\right)}$ <p>Avec <math>T_W(T_i, D_p) = a_i D_p^{b_i}</math>, où <math>T_i = [25, 15, 5, -2]</math>  <math>a_i = [1, 0.48, 0.15, 0.092]</math> et <math>b_i = [0, -0.36, -0.88, -0.96]</math></p>	$D_d = 0.01-10$	-2-25	$S = 0\text{‰}-33\text{‰}$
Van Eijk et al. (2011)	(zone de surf)	$\frac{dF}{dD} = D^c \times 10^{a(1-WED^b)}$ <p><math>a=10</math> <math>b=-0.35</math> et <math>c=-1.5</math></p> $WED = -3 + 35H_s$	$D \approx 0.5-10$		$WED \approx 10-200 \text{ W.m}^{-2}$



# Annexe 4 : Article scientifique

Atmospheric Research 132–133 (2013) 144–153



Contents lists available at ScienceDirect

Atmospheric Research

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/atmos](http://www.elsevier.com/locate/atmos)



## A model for the atmospheric transport of sea-salt particles in coastal areas

A. Demoisson, G. Tedeschi, J. Piazzola\*

*Southern University of Toulon-Var, Mediterranean Institute of Oceanography (MIO, UM 110) 83957, La Garde Cedex, France*



### ARTICLE INFO

#### Article history:

Received 9 November 2012

Received in revised form 11 April 2013

Accepted 18 April 2013

#### Keywords:

Coastal aerosols  
Atmospheric models  
Sea-sprays  
Fetch

### ABSTRACT

A model for the aerosol transport in the lower atmosphere is of great interest for studies on air and water quality. One of the difficulties of such a model is to provide the accurate source terms. In particular, for maritime environment, the production of particles generated at the air–sea interface by breaking waves largely varies in time and space (Piazzola et al., 2009). More particularly, near the coastal zone, the sea-spray aerosol fluxes depend on the development of the wave field. The present paper proposes some improvement of the model MACMod, published by Tedeschi and Piazzola (2011), which is dedicated to the transport of aerosol particles in the marine atmospheric boundary layer (MABL). Taking benefit of the experimental campaign MIRAMER conducted in the French Mediterranean in 2008, a new sea-spray source function has been introduced in the latter version of the model MACMod. This consists in a revisited version of the whitecap dependant formulation established by Monahan et al. (1986). The simulations were then validated using aerosol size distributions recorded on board the ship “Atalante” for different wind speeds. Error calculations show a good performance of the model since it predicts the aerosol concentration to within a maximum factor of 3 for particle radii between 0.5 to 5  $\mu\text{m}$ .

© 2013 Elsevier B.V. All rights reserved.

### 1. Introduction

Aerosol particles affect climate by scattering and absorbing radiation (Charlson et al., 1992), and may affect the heat budget. Among them, the particles generated at the air–sea interface by breaking waves represent a major component of the natural aerosol (Andrae, 1995). Sea-spray aerosols are mechanically produced by the interaction between wind and wave: when the wind speed increases beyond a critical value, waves break to dissipate the excess of energy. This is accompanied by the occurrence of whitecaps (Monahan and O’Muicheartaigh, 1980) and the primary marine aerosol production is directly related to the whitecap fraction, which is defined as the fraction of the sea surface covered by breaking waves, commonly denoted as  $W$ . Air entrained into the water breaks up into bubbles, which may be

transported to depths of several meters. When the bubbles rise and reach the surface, they burst and produce two kinds of droplets: film drops and jet drops. Detailed studies of the production of jet and film drops were made by observing the artificial burst of a single bubble (Blanchard, 1963, 1983; Resch and Afeti, 1991, 1992).

Sea-salts dominate atmospheric deposition in maritime regions (Gustafsson and Franzen, 1996; Farrell, 1995). However, the fate of marine aerosols in the marine atmosphere is still largely unknown. A model for the aerosol transport in coastal areas is then of great interest for a large number of applications among them, climate change and studies on air and water qualities. Tedeschi and Piazzola (2011) presented the development of the marine aerosol concentration model (MACMod), which is a 2D unsteady model dedicated to the atmospheric transport of marine aerosols in the marine atmospheric boundary layer (MABL). However, such a transport model needs to implement an accurate source term for the sea-spray particles. Uncertainties

\* Corresponding author. Tel.: +33 494142082; fax: +33 494142448.  
E-mail address: [piazzola@univ-tln.fr](mailto:piazzola@univ-tln.fr) (J. Piazzola).



on the sea-spray source function are still large (see Lewis and Schwartz, 2004). In particular, in coastal areas, the sea-spray production through breaking waves depends on both the fetch and the wind speed conditions (Piazzola et al., 2002). The present paper proposes to improve the MACMod predictions by introducing an accurate sea-spray source function (hereinafter S3F). To this end, the MACMod model was implemented in the Mediterranean coast using aerosol data acquired during the experimental campaign MIRAMER conducted in the French coastal Mediterranean area in 2008 on board the oceanographic vessel “Atalante.” Using the aerosol size distributions measured in different geographical locations south off the French coastal zone, a new source term has been introduced in MACMod. To this end, the Monahan et al. (1986) formulation, depending both on the aerosol radius and the whitecap fraction, has been revisited. First, a separated approach was used for both the film and jet drops, accounting for the different radius modes. Then, a new sea-state dependent model was used for the evolution of the whitecap fraction. The simulations were then validated with the help of aerosol size distributions recorded on board the ship “Atalante” for different meteorological conditions.

## 2. Field site and experiments

Measurements of aerosol concentrations have been conducted during the campaign, MIRAMER, which took place from May 15 to 28, 2008, in Toulon–Hyères bay (Fig. 1a) in the French Mediterranean, between 5.4 and 6.25° east longitude and between 42.2 and 43.2° north latitude. The region is exposed to air masses from the open sea, which corresponds to infinite fetches as defined by the criterion applied for fully developed sea conditions (Hsu, 1986), as well as to air masses originating over the European mainland, with short fetches, that represent continentally polluted conditions.

During the MIRAMER experiments, aerosol size distributions were acquired on board the ship “Atalante” (see Fig. 1b). The ship was equipped with meteorological sensors which provided the wind speed and direction, the relative humidity and air pressure. In addition, aerosol size distributions in the 0.1–95 µm size ranges were recorded using two particle measuring systems: the active scattering spectrometer probe (ASASP) and the classical scattering spectrometer probe (CSASP) located at an elevation of 10 m height. The data accumulation period was 1 min, and the data were stored as the average over a 4 min interval. Polynomial fits of 1st and 5th orders in Log (dN/dr) versus Log (r) space were made to the distributions to facilitate the analysis. It should be noted that the PMS probes use a small inlet through which losses during the sampling are reduced. The transport efficiency is considered optimal for the aerosol sizes below 15 µm (Willeke and Baron, 1993), which is the range of interest for the present study. Prior to the experiments, the probes had been calibrated with latex particles of known sizes. For this type of optical counters, the calibration for sizing is relatively easy thanks to calibrated latex spheres but the calibration for numbers remains a delicate operation and is more complicated to conduct. About the uncertainty of such optical probes, a minimum of a factor of 3 is expected between the aerosol concentration data simultaneously measured using two probes of the same type at the same location (Cohen, 2008 person.

communication; Reid et al., 2006). In addition, wave characteristics were recorded using a wave buoy that was moored ten miles south of the coasts (Fig. 1a). Nine different meteorological and oceanographic conditions are selected for this study (see Table 1).

## 3. The Mediterranean aerosol concentration model, MACMod

The Mediterranean aerosol concentration model, MACMod, is a two-dimensional unsteady model developed to describe the evolution of aerosol concentrations in the marine area (for more details, see Tedeschi and Piazzola (2011)). The budget equation is integrated over a Cartesian grid (regular in the horizontal direction and stretched in the vertical direction), using the finite volume method (Patankar and Spalding, 1972). The environmental data such as the wind velocity, the friction velocity and the air and sea temperatures, can be either pre-computed with a meteorological model for a real case modeling (Pezzoli et al., 2004; Guenard et al., 2006, for applications to the Mediterranean coast), taken from a theoretical parameterization (this will be the case for the present study) or set to a constant value. The environmental data can be updated regularly with time (which is especially relevant when using a mesoscale meteorological model to drive MACMod). Sub-routines were developed for each physical process, such as the aerosol source function, aerosol deposition on the marine surface, gravitational settling or turbulent dispersion. The user can select from various expressions to model the underlying physics. According to use, an empirical vertical profile of aerosol concentration can be applied in input of the model following the work of Piazzola and Despiiau (1997, 1998). In the present study, the initial aerosol concentration was taken to be zero.

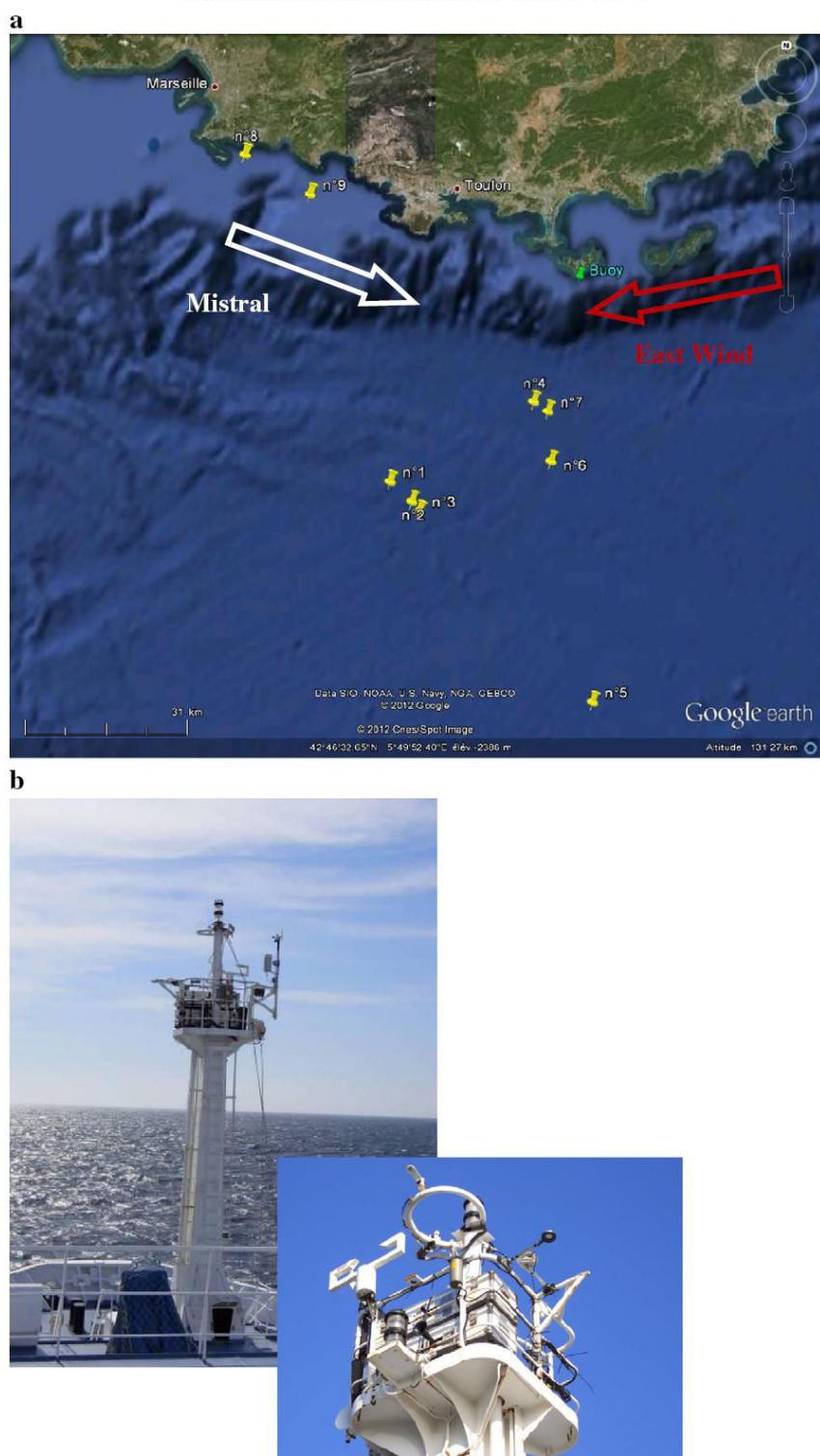
In MACMod, the Monahan et al. (1986) formulation (hereinafter M86) is used to model the aerosol flux at the sea surface in open ocean. In the present study, this formulation was improved using aerosol size distributions recorded during the MIRAMER campaign, in order to better account for the north Mediterranean conditions.

## 4. Sea-spray source function-whitecap fluxes

The primary marine aerosol source function describes the surface flux of sea-spray aerosols, i.e., the number of droplets per increment droplet size produced per unit surface area and per unit time (in  $\mu\text{m}^{-1} \text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ). The particle size may be expressed as  $r_d$  (or  $D_d$ ) or  $r_{80}$  (or  $D_{80}$ ), i.e. the radius (or the diameter) corresponding to relative humidity  $RH = 0\%$  or  $RH = 80\%$ . Furthermore, the sea-spray source function, hereinafter S3F, can also be related to the radius at formation, i.e.  $r_0$ . The original M86 formulation provides the size resolved number flux at 80% relative humidity for aerosol particles of radius  $r_{80}$ , as follows:

$$\frac{dF}{dr_{80}} = W \tau^{-1} \frac{dE}{dr_{80}} \quad (1)$$

where  $W$  is the whitecap coverage fraction,  $\tau$  represents the time constant characterizing the whitecap decay and  $dE/dr_{80}$  is the number of droplets produced during the gradual decay of a whitecap surface unit per increment of droplet radius



**Fig. 1.** a: The yellow pins show the locations of the aerosol size distribution samplings made on board of the “Atalante” from the 18 to the 28 May 2008. Each location is numbered from 1 to 9. The green pin shows the location of the buoy. b: The mast of the ship Atalante equipped with the two particle measuring systems and meteorological sensors at an elevation of 10 m height.



**Table 1**

Details of the various meteorological and oceanographic conditions during the MIRAMER campaign. The left column indicates the number of each location of aerosol sampling, as reported in Fig. 1a.

No	Wind speed (m s <sup>-1</sup> )	Fetch (km)	Wave height (m)	Number of aerosol spectra
1	4.6	130	1.2	8
2	5.7	170	1.2	16
3	6.2	200	1.1	11
4	8.8	50	1.2	8
5	9.8	350	1.9	12
6	10.3	320	1.4	12
7	11.8	300	2	22
8	19.0	30	2.5	8
9	27.8	20	2.5	8

(in m<sup>-2</sup> μm<sup>-1</sup>). The whitecap coverage fraction was expressed by Monahan and O'Muicheartaigh (1980) as follows:

$$W = 3.71 \times 10^{-6} U_{10}^{3.41}. \quad (2)$$

The formulation for  $dE/dr$  was established on the basis of measurements of aerosol production laboratory-simulated whitecaps. In M86,  $dE/dr_{80}$  is given by:

$$\frac{dE}{dr_{80}} = 1.26 \times 10^6 \times r^{-3} \times \left(1 + 0.057 r_{80}^{1.05}\right) \times 10^{1.19 \exp(-B^2)} \quad (3)$$

with

$$B = \frac{0.380 - \log r_{80}}{0.650}. \quad (4)$$

To establish a sea-spray source function characteristics of the Mediterranean area, we have adapted the M86 formulation, which is based on tank experiments using artificial waters, to the aerosol data acquired during the MIRAMER campaign. Three various conditions have been selected corresponding to low and medium wind speeds of 4.6, 9.8 and 11.8 m s<sup>-1</sup> and relatively long fetches (more than 100 km) which attenuate the influence of continental particles. Of course, another numerous aerosol spectra were acquired during the campaign (see Table 1), which have been used to validate the new S3F.

To improve the predictions of the transport model MACMod, we need to provide an accurate formulation for the sea-spray function from bubble bursting processes over the study area. In coastal areas, the sea surface production depends on the wind speed that could be in turn accompanied by variations of oceanographic parameters. As outlined above, this paper focuses on the whitecap dependent formulation noted M86. First, the M86 formulation was revisited by separating the production of drops into several modes (Section 4.1). Then, a new wave dependent model for the whitecap fraction,  $W$ , was introduced to better take into account the sea state characteristics (Section 4.2). The modifications were made according to the aerosol size distributions measured during the MIRAMER campaign.

#### 4.1. A new whitecap dependent formulation for the sea-spray fluxes

The aerosol concentrations calculated by the MACMod model using M86 were compared to the ones measured on board for three different wind speed values, i.e., 4.6, 9.8 and 11.8 m s<sup>-1</sup>. The results were reported in Fig. 2a to c. We can note substantial differences between the MACMod calculations and the aerosol data. The model overestimates the concentration values for particles of radius larger than 0.5 μm, and more particularly in the 1–3 μm size range. In contrast, the predicted concentrations are rather underestimated for radii smaller than 0.5 μm. This is explained by the fact that the formulation M86 is plotted on one radius mode of about 2.4 μm, while the experimental data have two radius modes of about 0.3 μm and 3 μm in addition to the Aitken mode. To obtain a good agreement between the MACMod calculations and the experimental data, we have established a new formulation by separating the Gaussian term of the M86 formulation into three Gaussian terms, one for each mode. This leads to:

$$\frac{dE}{dr_{80}} = 1.26 \times 10^6 \times r^{-3} \times \left(1 + 0.057 r_{80}^{1.05}\right) \times 10^{\sum_{i=1}^3 A_i \exp B_i^2} \quad (5)$$

with

$$A_1 = 4.5, A_2 = 0.408, A_3 = 0.931.$$

The coefficients  $B_i$  are then expressed by:

$$\begin{aligned} B_1 &= \frac{-1.53 - \log_{10} r_{80}}{0.55} \\ B_2 &= \frac{-0.51 - \log_{10} r_{80}}{0.57} \\ B_3 &= \frac{0.57 - \log_{10} r_{80}}{0.52}. \end{aligned} \quad (6)$$

In Fig. 3, the aerosol distributions recorded for the three wind speeds outlined above were compared to the MACMod outputs using Eqs. (5) and (6). Fig. 3 shows that the introduction of the new formulation for the term  $dE/dr$  in the MACMod model leads to a good performance of the model for particles of sizes between 0.1 and 10 μm, especially for wind speeds of 9.8 m s<sup>-1</sup> and 11.8 m s<sup>-1</sup>. For a wind speed of 4.6 m s<sup>-1</sup>, we can note that the model slightly overestimates the concentrations. To obtain a better performance, the formulation used for whitecap fraction was then modified (see Section 4.2).

#### 4.2. A sea-state dependent model for the whitecap fraction

The sea-spray production also depends on the sea state. In coastal areas, the vicinity of the shoreline can induce the occurrence of a fetch and different states of development of the wave field. This affects the breaking wave process (Lafon et al., 2004). To improve the predictions of the MACMod model, we have then also modified the formulation of the whitecap fraction,  $W$ , as expressed in Eq. (2). Since the work of Blanchard (1963), substantial improvements in knowledge of the variation of the whitecap coverage have been obtained using wind speed (e.g., Monahan and O'Muicheartaigh, 1980;

Monahan et al., 1983) and friction velocity (Lafon et al., 2007; Kraan et al., 1996; Massel, 2007). To address the evolution of the whitecap fraction for developing wave fields, the whitecap formulation can be expressed as a function of the wave-age, which is defined as the ratio between the wave

phase velocity  $C_p$  and alternatively the wind speed  $U$  or the wind friction velocity,  $u_*$ . The wave age is known to be strongly related to the wave-field development (Kraan et al., 1996). During the MIRAMER campaign, the peak frequency was measured by a buoy anchored south of Porquerolles Island. The wave velocity  $C_p$  was then determined using the following formulation:

$$C_p = \frac{g}{2\pi f_p} \quad (7)$$

where  $f_p$  is the spectral peak frequency and  $g$  the acceleration of the gravity.

Several expressions for the whitecap coverage formulation can be found in the literature. The whitecap model of Lafon et al. (2007), developed for the northern Mediterranean region, depends on the wave age using the wind speed at an elevation of 10 m height. It can be summarized as,

$$W = \begin{cases} 70(C_p/U_{10})^{8.5} & \text{for } C_p/U_{10} \leq 0.69 \\ 0.65(C_p/U_{10})^{-4.1} & \text{for } C_p/U_{10} > 0.69 \end{cases} \quad (8)$$

where  $U_{10}$  is the wind speed referred at 10 m height.

Another wave age dependent formulation expressed as a function of the wind friction velocity was proposed by Kraan et al. (1996):

$$W(\%) = 96 \left( \frac{C_p}{u_*} \right)^{-2.08} \quad (9)$$

where  $u_*$  is the wind friction velocity.

It is well recognized that the model by Lafon et al. (2007) is more particularly recommended for young seas (De Leeuw et al., 2011). For developed seas characteristics of large fetches, as observed during the MIRAMER campaign, it can be relevant to use another wave age dependent expression. Using a statistical analysis of data acquired during the MIRAMER campaign (reduced to the three previous wind speeds), we obtain the following formulation:

$$W(\%) = 416.9 \left( \frac{C_p}{u_*} \right)^{-2.708} \quad (10)$$

Fig. 4a to c shows a comparison between the particle size distributions recorded on the ship "Atalante" during the

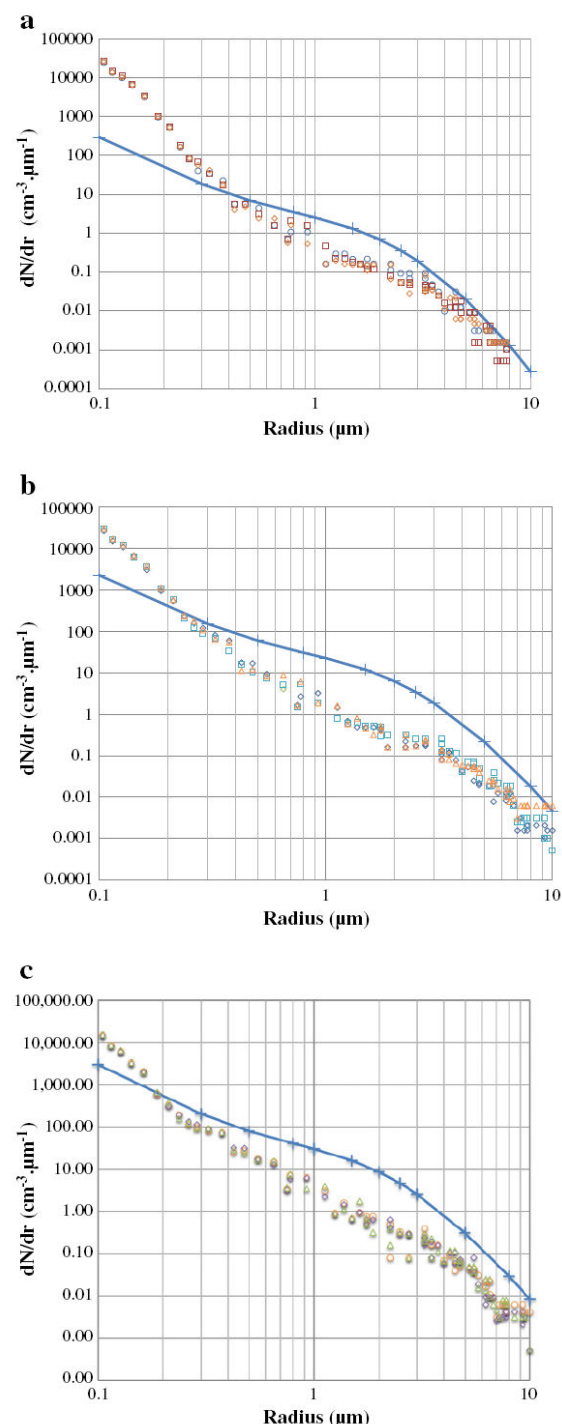


Fig. 2. a: Comparison of particle size distributions recorded on the ship "Atalante" during the MIRAMER campaign (the squares, the diamonds and the circles) and the ones calculated with MACMod using the M86 source function (the line) for a wind speed of  $4.6 \text{ m s}^{-1}$  and a fetch of 130 km in the Mediterranean coastal zone. The aerosol spectra were normalized to a relative humidity of 80%. b: Comparison of particle size distributions recorded on the ship "Atalante" during the MIRAMER campaign (the squares, the diamonds and the circles) and the ones calculated with MACMod using the M86 source function (the line) for a wind speed of  $9.8 \text{ m s}^{-1}$  and a fetch of 350 km in the Mediterranean coastal zone. The aerosol spectra were normalized to a relative humidity of 80%. c: Comparison of particle size distributions recorded on the ship "Atalante" during the MIRAMER campaign (the squares, the diamonds and the circles) and the ones calculated with MACMod using the M86 source function (the line) for a wind speed of  $11.8 \text{ m s}^{-1}$  and a fetch of 130 km in the Mediterranean coastal zone. The aerosol spectra were normalized to a relative humidity of 80%.



MIRAMER campaign and the model predictions using the revisited source function for three different wind speeds. In addition, Fig. 4 shows the calculated aerosol size distributions using the former M86 formulation for the S3F, as already reported in Fig. 2. In Table 2, a comparison between the ratios between the concentrations calculated using the modified MACMod model and the experimental data using the formulation for the whitecap fraction reported in (Eq. (10)), the one proposed by M86, Lafon et al. (2007) and Kraan et al.

(1996) are reported. We can note that the use of Eq. (10) for the whitecap fraction leads to better predictions.

### 5. Model performance

The new S3F was established using averaged aerosol size distributions measured on board of the Atalante for three wind speeds, i.e., 4.6, 9.8 and 11.8  $\text{m s}^{-1}$ . To validate the new formulation, the aerosol spectra calculated using the new version of MACMod have been compared to the data recorded in the Mediterranean during the MIRAMER campaign. This corresponds to eleven days of measurements. During this period, the wind speed varied from 4.6  $\text{m s}^{-1}$  to 27.8  $\text{m s}^{-1}$  and the fetch varied from 20 to 350 km.

The performance factor (68% confidence) of the model for predicting the aerosol concentration has been estimated from the maximum ratio by which the modeled aerosol concentration differs from the experimental concentration. The results obtained for six different aerosol radii are presented in Table 3. The performance of the MACMod model using the M86 source function is also reported. This shows the improvement of the model when using the new sea-spray function. It should be noted that Table 3 shows least performance for both very large and small aerosols. The first ones, produced by surface tearing at the wave crest, are more sensitive to the wind gusts (Piazzola and Desplau, 1997). Generally, the west and northwest winds in the study area are quite gusty, which may then result in the relatively large uncertainty of the model for the “giant particles.” Furthermore, measurement uncertainties increase for the larger particles due to sampling statistics. The large variation in the concentration of the small particles, characteristics of the accumulation mode, in particular for very short fetches, is due to the variability of the sources over land, a factor which is difficult to account for in a theoretical model (Van Eijk et al., 2011).

Same results are presented in Table 4 but as a function of the wind speed, and averaged over all radius values. This shows that even if the formulation reported in Eq. (5) has been established on the basis of only three wind speed values (i.e., 4.6, 9.8 and 11.8  $\text{m s}^{-1}$ ), a good agreement is found between both the predicted and the measured concentrations for wind speed up to 28  $\text{m s}^{-1}$ . As an example, Fig. 5 illustrates the performance of the model for the 1  $\mu\text{m}$  particles using the new sea-spray function. The line  $y = x$

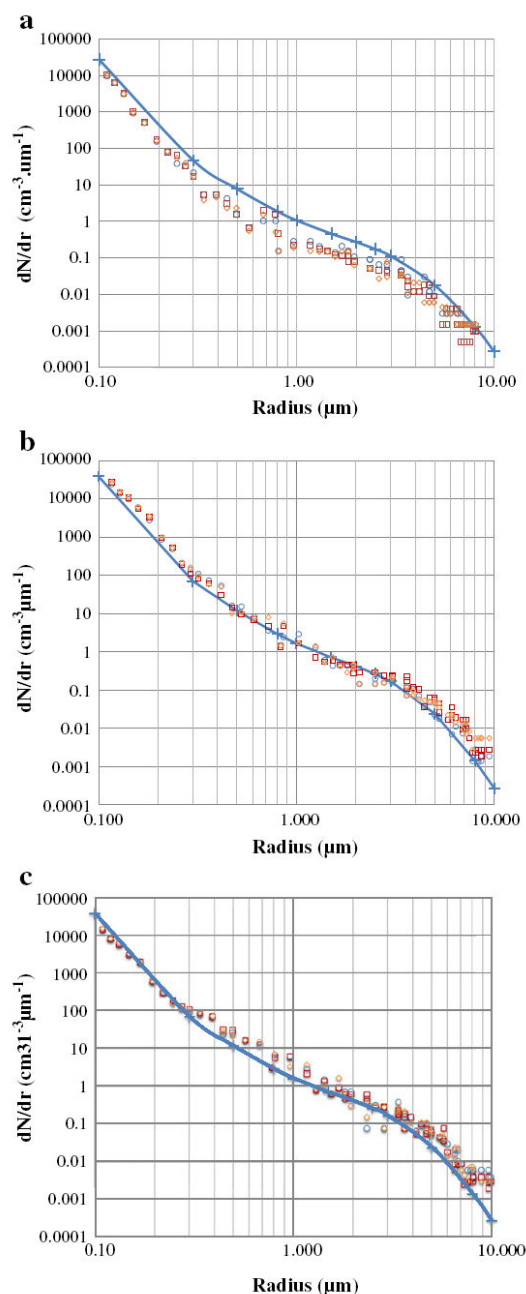


Fig. 3. a: Comparison of particle size distributions recorded on the ship “Atalante” during the MIRAMER campaign (the squares, the diamonds and the circles) and the ones calculated with MACMod using the M86 source function with the modified formulation of  $dE/dr$  (the line) for a wind speed of 4.6  $\text{m s}^{-1}$  and a fetch of 130 km in the Mediterranean coastal zone. The aerosol spectra were normalized to a relative humidity of 80%. b: Comparison of particle size distributions recorded on the ship “Atalante” during the MIRAMER campaign (the squares, the diamonds and the circles) and the ones calculated with MACMod using the M86 source function with the modified formulation of  $dE/dr$  (the line) for a wind speed of 9.8  $\text{m s}^{-1}$  and a fetch of 350 km in the Mediterranean coastal zone. The aerosol spectra were normalized to a relative humidity of 80%. c: Comparison of particle size distributions recorded on the ship “Atalante” during the MIRAMER campaign (the squares, the diamonds and the circles) and the ones calculated with MACMod using the M86 source function with the modified formulation of  $dE/dr$  (the line) for a wind speed of 11.8  $\text{m s}^{-1}$  and a fetch of 130 km in the Mediterranean coastal zone. The aerosol spectra were normalized to a relative humidity of 80%.

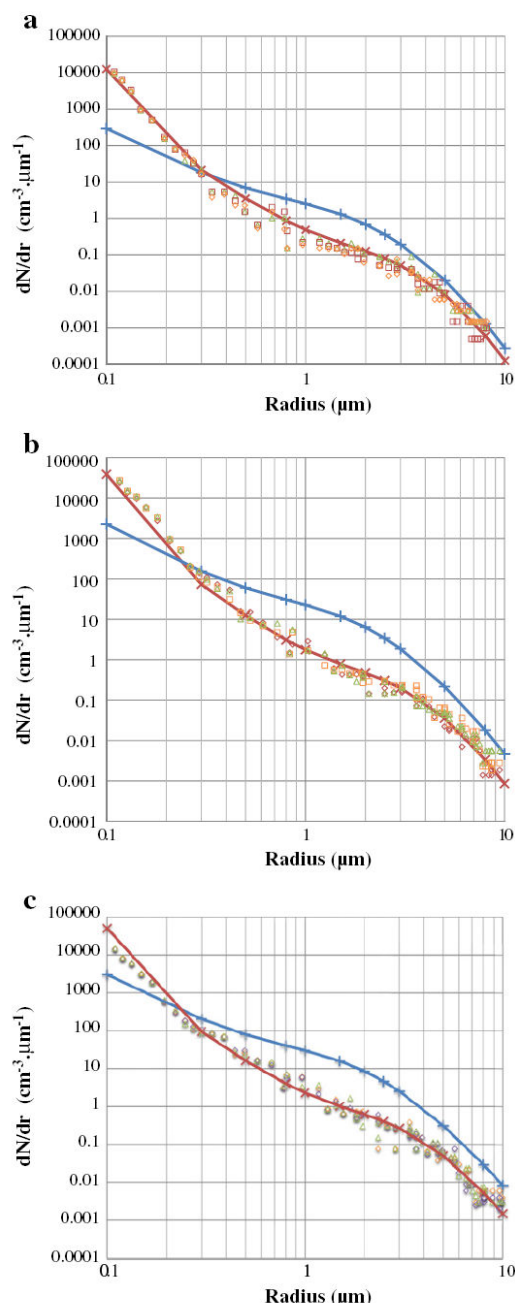
represents ideal model performance and the standard deviation from these lines is 0.66, which means that the model predicts the concentration of  $1 \mu\text{m}$  particles to within a factor of 1.90 (68% confidence limit).

Tables 3 and 4 then indicate that the MACMod model may well describe the variation of aerosol size distributions as function of the meteorological conditions in Mediterranean areas.

**Table 2**

Ratio between the modeled concentration using the new formulation of  $dN/dr$  and different whitecap coverage formulations, and the measured concentration, for three wind speeds and particle radius of  $1 \mu\text{m}$ .

U ( $\text{m s}^{-1}$ )	Monahan and O'Muicheartaigh (1980)	Lafon et al. (2007)	Kraan et al. (1996)	Present study
4.6	1.88	2.01	2.27	0.87
9.8	1.91	4.86	2.09	1.14
11.8	1.05	3.86	1.41	0.88



## 6. Discussion

The present paper focuses on the sea-spray aerosols generated through the bubble bursting processes. As outlined above, the bubble bursting processes generate two kinds of sea-salt particles: the film drops, generated by the burst of the bubble cap and the jet drops, which result from the collapse of the air cavity (e.g., Resch and Afeti, 1992). The film drops are mainly smaller than  $2 \mu\text{m}$ , while the size of jet drops is generally ten percent of the parent bubble and shows different properties in terms of physico-chemical characteristics, as noted by Lewis and Schwartz (2004). The original M86 model is based on the size spectrum of drops issued from the wave breaking production processes. The exponential term corresponds to a Gaussian function where the coefficients could be understood as the modal radius of the produced particles and as the standard deviation to the modal radius, in logarithmic value. Since both the film and jet droplets are issued from two different production processes, it is rather logical to consider separately their contribution to the aerosol size spectrum. Various values for the modal radii can be found in the literature. Guelle et al. (2001) suggest that the film drops were smaller than  $1 \mu\text{m}$  and that jet drops are found in the  $1\text{--}8 \mu\text{m}$  size range. The analysis of our experimental data shows two modal radii:  $0.32 \mu\text{m}$  and  $3.71 \mu\text{m}$ , accounting respectively for the film drops and the jet drop production. Moreover, a third modal radius (i.e.,  $0.03 \mu\text{m}$ ) was added to account for the production of sub-micrometer particles of size larger than  $0.1 \mu\text{m}$ , which is the

**Fig. 4.** a: Comparison of particle size distributions recorded on the ship "Atalante" during the MIRAMER campaign (the squares, the triangles and the diamonds), the particle size distributions calculated with MACMod using the S3F of the present study (the red line) and the ones calculated with MACMod using the M86 source function (the blue line) for a wind speed of  $4.6 \text{ m s}^{-1}$  and a fetch of  $130 \text{ km}$  in the Mediterranean coastal zone. The aerosol spectra were normalized to a relative humidity of 80%. b: Comparison of particle size distributions recorded on the ship "Atalante" during the MIRAMER campaign (the squares, the triangles and the diamonds), the particle size distributions calculated with MACMod using the S3F of the present study (the red line) and the ones calculated with MACMod using the M86 source function (the blue line) for a wind speed of  $9.8 \text{ m s}^{-1}$  and a fetch of  $350 \text{ km}$  in the Mediterranean coastal zone. The aerosol spectra were normalized to a relative humidity of 80%. c: Comparison of particle size distributions recorded on the ship "Atalante" during the MIRAMER campaign (the squares, the triangles and the diamonds), the particle size distributions calculated with MACMod using the S3F of the present study (the red line) and the ones calculated with MACMod using the M86 source function (the blue line) for a wind speed of  $11.8 \text{ m s}^{-1}$  and a fetch of  $130 \text{ km}$  in the Mediterranean coastal zone. The aerosol spectra were normalized to a relative humidity of 80%.



**Table 3**

Maximal confidence factor (68%) between measurements and modeled data calculated using both the M86 formulation and the present model for the source function and for different particle radii.

Radius ( $\mu\text{m}$ )	0.1	0.5	1	2.5	5	10
Present study	5.91	2.47	1.90	1.89	2.32	5.68
M86	5 299.67	7.21	14.83	15.43	10.66	8.80

lower diameter measured during the MIRAMER campaign using our aerosol counters. Indeed, for maritime environment, a lognormal function centered on the radius mode of  $0.03 \mu\text{m}$  tends to be the best fit for aerosol size distributions in the  $0.1$ – $0.3 \mu\text{m}$  size range (e.g., Gathman, 1983; Piazzola et al., 2003). This explains why we need to work on this mode to study the variation of aerosol concentrations of sub-micrometer aerosols. However, in coastal areas, origin of sub-micrometer particles can result in some uncertainties (see below).

The M86 function source has been modified and the exponential term has been separated in three terms, as follows:

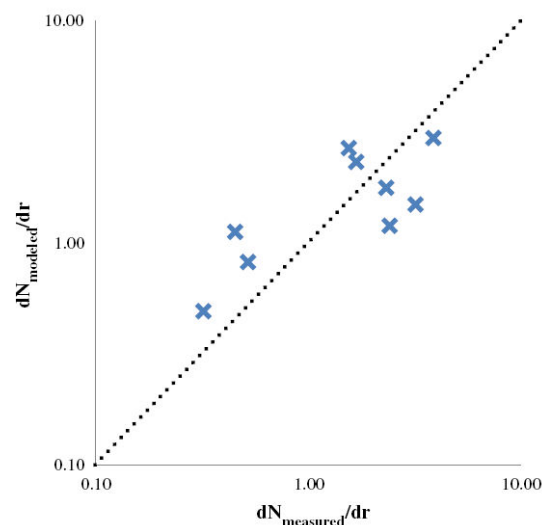
$$e^{\frac{0.380 - \log_{10} r_{80}^2}{0.650}} \rightarrow e^{\frac{-1.53 - \log_{10} r_{80}^2}{0.55}} + e^{\frac{-0.51 - \log_{10} r_{80}^2}{0.57}} + e^{\frac{0.57 - \log_{10} r_{80}^2}{0.52}}. \quad (11)$$

In Section 4.2 of the present paper, we proposed a new formulation for the whitecap coverage variation. The wave field response to the wind variation needs a certain duration time before reaching a stationary state. Most of the time, the aerosol production occurs for unsteady sea state conditions. To take the wave field development into account, we used the wave age parameter  $\frac{C_p}{u_*}$  (e.g., Kraan et al., 1996; Janssen et al., 1994; Young, 1999; Lafon et al., 2007). When the sea is fully developed ( $\frac{C_p}{u_*} \approx 30$ ), the wind has transferred the maximum of energy to the waves. We have adapted a new formulation for the whitecap fraction to the Mediterranean region. The use of the new formulation in MACMod provides better results for the simulated aerosol concentration for various wave field developments in the northern Mediterranean region. We note a very good agreement between the new version of MACMod and the data, since the model predicts the concentration of particles to within a maximum factor of 3. However, it should be noted that the larger part of the small particles (with radius  $< 0.3 \mu\text{m}$ ) has a continental and/or anthropogenic origin (Piazzola et al., 2012). This is confirmed by Fig. 2, which shows that the number of the  $0.1 \mu\text{m}$  particles decreased with wind speed. This is consistent with the mixed origin of the particles in coastal areas, more particularly for offshore winds (Piazzola and Despiau, 1997; Van Eijk and De Leeuw, 1992). Indeed, the over-water

**Table 4**

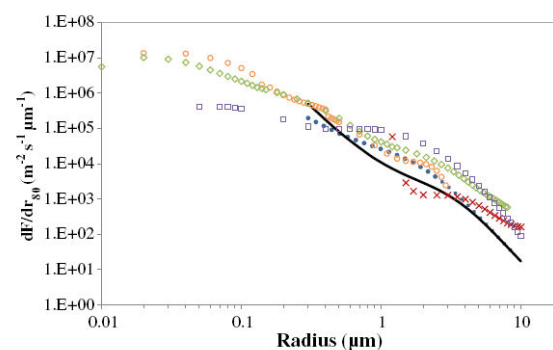
Maximal confidence factor (68%) between measurements and modeled data calculated using both the M86 formulation and the present model for the source function and for different wind speeds value varying from  $4.6 \text{ m s}^{-1}$  to  $28 \text{ m s}^{-1}$ .

Wind ( $\text{m s}^{-1}$ )	4.6	5.7	6.2	8.7	9.8	10.3	11.8	19	27.8
Present study	2.85	2.81	2.57	2.33	1.43	2.72	1.50	2.03	3.94
M86	4.00	4.80	11.97	2.98	14.12	14.61	13.77	6.19	7.39



**Fig. 5.** Scatter plot of the modeled concentrations of  $1 \mu\text{m}$  particles versus experimental values. The dashed line corresponds to the ideal case.

concentration of land-originated particles decreases at higher wind speeds due to dilution by faster advection and enhanced turbulent deposition. Obviously, the S3F proposed in this paper does not take into account the land-originated aerosols. Since we have used data acquired for long fetches ( $> 100 \text{ km}$ ), we have neglected the continental contribution that mainly deals with the smaller particles. This results in some uncertainties on the prediction of the atmospheric concentration of the smaller particles, in particular at low wind speeds, resulting in conditions where the dispersion effects are less efficient. In addition, a part of the smaller particles ( $< 0.1 \mu\text{m}$ ) is issued from gas-particle conversion processes resulting in newly-formed ultrafine particles often observed in coastal and marine environments (Vaattovaara et al., 2006). The end of



**Fig. 6.** Comparison of the sea-spray formulation derived in the present paper for a wind speed of  $10 \text{ m s}^{-1}$  and for a  $350 \text{ km}$  fetch (the thick black line) and the flux formulations of Monahan et al. (1986), the dotted line, Clarke et al. (2006), the diamonds, De Leeuw et al. (2003), the squares, and Martensson et al. (2003), the circles, using the whitecap fraction  $W$  given by Eq. (10). The crosses show the sea-spray flux calculated on the basis of the aerosol size distributions measured on board the ship "Atalante" by using the equilibrium assumption at a wind speed of  $10 \text{ m s}^{-1}$  and the expression of Hoppel (2002) for an interfacial height  $\delta$  of  $2.5 \text{ m}$ .

an event, which is characterized by the growth of these ultrafine particles to detectable sizes might be visible in the aerosol sizes roughly between 0.01 and 0.1  $\mu\text{m}$ . In coastal areas, the physical process responsible can be fine particle bursts corresponding to coastal anthropogenic activities or could be due to grown particles nucleating over the sea (Piazzola et al., 2012). For purely maritime air masses, this particle mode can be related to a sea-salt aerosol production through the wind speed and breaking waves (O'Dowd and Smith, 1993; Piazzola and Despiou, 1997).

The influence of non-sea salt particles in the transport model can be introduced through the implementation of the initialization data, especially in case of offshore winds. This requires the vertical profile of aerosol concentrations in the entry of the calculation domain. Since we do not consider land-originated aerosols in the present study, the initial aerosol concentration was taken to be zero. To improve the performance of the numerical model, the initialization data of the model should provide the contribution of continental aerosols. That is why work is currently in progress to develop an accurate methodology which would allow determination of vertical aerosol profiles above any surface (sea, soil) as initialization of the transport model.

In addition, Fig. 6 shows a comparison of the sea-spray formulation derived in the present paper for a wind speed of about  $10 \text{ m s}^{-1}$  and for a 350 km fetch and the modified flux formulations of Monahan et al. (1986), Clarke et al. (2006), De Leeuw et al. (2003), and Martensson et al. (2003) using the whitecap fraction  $W$  given by Eq. (10). In addition, Fig. 6 also shows the sea-spray fluxes calculated on the basis of aerosol spectra measured on board the ship "Atalante" using the equilibrium assumption (Hoppel, 2002). The sea-spray fluxes plotted in Fig. 6 are expressed in terms of  $r_{80}$ . In addition, prior to the comparison reported in Fig. 6, we converted the various fluxes to  $dF/dr_{80}$ . In particular, both the Martensson et al. (2003) and the Clarke et al. (2006) formulations, which were initially expressed in terms of the dry radius  $r_d$  and the dry diameter  $D_d$ , were converted to 80% of relative humidity and expressed as a function of  $r_{80}$ . Fig. 6 shows that the present model compares favorably with the sea-spray formulation of Martensson et al. (2003), in particular for submicron particles. Above  $1 \mu\text{m}$ , it predicts lower sea-spray fluxes than other formulations. This can be due to the fact that the Clarke et al. (2006) data correspond to higher sea surface temperature while the De Leeuw et al. (2003) model is based on surf zone formulation.

## 7. Conclusion

A model for the aerosol transport is of great interest for studies on air and water qualities. To this end, a 2D unsteady model dedicated to the atmospheric transport of marine aerosols in the marine atmospheric boundary layer (MABL), and the marine aerosol concentration model (MACMod), was recently developed (Tedeschi and Piazzola, 2011). However, such a transport model needs to implement an accurate source term for the sea-spray source function (S3F). Using the aerosol size distributions measured in a Mediterranean coastal zone, a new source term has been introduced in the MACMod model. We revisited the whitecap dependant formulation proposed by Monahan et al. (1986) by using a

separated approach of both the film drops and jet drop production. In addition, a new wave dependent model for the whitecap fraction,  $W$ , was introduced in the formulation to take into account the evolution of the whitecap fraction for partially developed wave fields. The corresponding marine source term was then introduced in the MACMod model. The MACMod calculations have been compared to aerosols size distributions measured on board of the Atalante for several particular wind speeds and fetches. We noted a very good agreement since the model MACMod predicts the concentration of particles to within a maximum factor of 3.

## Acknowledgments

This work was partially sponsored by the Region PACA under contract no. 2010\_07962-DEB 10-1489 and the ONERA under contract no. 2012/115612/DGA of the AS 38 Franco-Canadian agreement.

## References

- Andrae, M.O., 1995. Climate effects of changing atmospheric aerosol levels. In: Henderson-Sellers, A. (Ed.), *World Survey of Climatology (Future Climate of the World)*, 16, pp. 341–392.
- Blanchard, D.C., 1963. The electrification of the atmosphere by particles from bubbles in the sea. *Prog. Oceanogr.* 1, 71–202.
- Blanchard, D.C., 1983. In: Slinn, P.S., Liss, W.G.N. (Eds.), *The Production, Distribution, and Bacterial Enrichment of the Sea Salt Aerosol*.
- Charlson, R.J., Schwartz, S.E., Hales, J.M., Cess, R.D., Coakley, J.A., Hansen, J.E., Hofmann, D.J., 1992. Climate forcing by anthropogenic aerosols. *Sci. Mag.* 117 (January).
- Clarke, Antony D., Owens, Steven R., Zhou, Jingchuan, 2006. An ultrafine sea-salt flux from breaking waves: implications for cloud condensation nuclei in the remote marine atmosphere. *J. Geophys. Res.* 111 (D6), 1–14.
- Cohen, L., 2008. Personal Communication.
- De Leeuw, G., Moerman, M., Cohen, L., Brooks, B., Smith, M., Vignati, E., 2003. Aerosols, bubbles and sea spray production studies during the RED experiments. *Proceedings AMS Conference*. Long Beach, CA, 9–13 Feb.
- De Leeuw, G., Andreas, E.L., Anguelova, M.D., Fairall, C.W., Lewis, E.R., Dowd, C.O., Schulz, M., et al., 2011. Production flux of sea spray aerosol. *Rev. Geophys.* 1–39. <http://dx.doi.org/10.1029/2010RG000349>.
- Farrell, E.P., 1995. Atmospheric deposition in maritime environments and its impact on terrestrial ecosystems. *Water Air Soil Pollut.* 1, 1573–2932.
- Gathman, S.G., 1983. Optical properties of the marine aerosol as predicted by the Navy aerosol model. *Opt. Eng.* 22, 57–62.
- Guelle, W., Schulz, M., Balkanski, Y., Dentener, F., 2001. Influence of the source formulation on modeling the atmospheric global distribution of sea salt aerosol. *J. Geophys. Res.* 106 (D21), 27509–27524. <http://dx.doi.org/10.1029/2001JD90024>.
- Guenard, P., Drobinski, J.L., Caccia, G., Tedeschi, P., Currier, 2006. Dynamics of the MAP IOP-15 severe Mistral event: observations and high-resolution numerical simulations. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 132, 757–777.
- Gustafsson, M.E.R., Franzen, L.G., 1996. Dry deposition and concentration of marine aerosols in a coastal area. *Atmos. Environ.* 30 (6), 977–989.
- Hoppel, W.A., 2002. Surface source function for sea-salt aerosol and aerosol dry deposition to the ocean surface. *J. Geophys. Res.* 107 (D19), 1–17.
- Hsu, S.A., 1986. A mechanism for the increase of wind stress (drag) coefficient with wind speed over water surfaces: a parametric model. *J. Phys. Oceanogr.* 16, 144–150.
- Janssen, P.A.E.M., Hasselmann, K., Hasselmann, S., Komen, G.J., 1994. Parameterization of source terms and the energy balance in a growing wind sea. In: Komen, G.J. (Ed.), *Dynamics and Modelling of Ocean Waves*.
- Kraan, C., Oost, W.A., Janssen, P.A.E.M., 1996. Wave Energy Dissipation by Whitecaps. *J. Atmos. Oceanic Tech.* 13, 262–267.
- Lafon, C., Piazzola, J., Forget, P., Le Calve, L., Despiou, S., 2004. Analysis of the variations of the whitecap fraction as measured in a coastal zone. *Bound.-Lay. Meteorol.* 111 (2), 339–360.
- Lafon, C., Piazzola, J., Forget, P., Despiou, S., 2007. Whitecap coverage in coastal environment for steady and unsteady wave field conditions. *J. Mar. Syst.* 66, 38–46.



- Lewis, E.R., Schwartz, S.E., 2004. Sea salt aerosol production: mechanisms, methods, measurements and model – a critical review. *Geophysical Monograph*, 152. American Geophysical Union, Washington DC.
- Martensson, E.M., De Leeuw, G., Cohen, L.H., Hansson, H.-C., 2003. Laboratory simulations and parameterization of the primary marine aerosol production. *J. Geophys. Res.* 108 (D9), 1–12.
- Massel, S.R., 2007. *Ocean Waves Breaking and Marine Aerosol Fluxes*. Springer, New York 183–206.
- Monahan, E.C., O'Muircheartaigh, I.G., 1980. Optical power law description of oceanic whitecap coverage dependence on wind speed. *J. Phys. Oceanogr.* 10, 2094–2099.
- Monahan, E.C., Fairall, C.W., Davidson, K.L., Boyle, P.J., 1983. Observed interrelation between 10 m winds, ocean whitecaps and marine aerosols. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 109, 375–392.
- Monahan, E.C., Davidson, K.L., Spiel, D.E., 1986. A model of marine aerosol generation via whitecaps and wave disruption. In: Monahan, E.C., Mac Niocaill, G. (Eds.), *Oceanic Whitecap and Their Role in Air–Sea Exchange Processes*. Reidel, Dordrecht, pp. 167–174.
- O'Dowd, C.D., Smith, M.H., 1993. Physico-chemical properties of aerosol over the North East Atlantic: evidence for wind speed related sub-micron sea-salt aerosol production. *J. Geophys. Res.* 98, 1137–1149.
- Patankar, S.V., Spalding, D.B., 1972. A calculation procedure for heat, mass and momentum transfer in three-dimensional parabolic flows. *J. Heat Mass Transfer* 15, 1787–1806.
- Pezzoli, A., Tedeschi, G., Resch, F., 2004. Numerical simulation of strong wind situations near the Mediterranean French coast: comparison with FETCH data. *J. Appl. Meteorol.* 43 (7), 997–1015.
- Piazzola, J., Despiou, S., 1997. Vertical distribution of aerosol particles near the air–sea interface in coastal zone. *J. Aerosol Sci.* 28 (8), 1579–1599.
- Piazzola, J., Despiou, S., 1998. The vertical variations of extinction and atmospheric transmission due to aerosol particles close above the sea surface in Mediterranean coastal zone. *Opt. Eng.* 37 (6), 1684–1695.
- Piazzola, J., Forget, P., Despiou, S., 2002. A sea spray generation function for fetch-limited conditions. *Ann. Geophys.* 20 (11), 121–131.
- Piazzola, J., Bouchara, F., Van Eijk, A.M.J., De Leeuw, G., 2003. Development of the Mediterranean extinction code MEDEX. *Optical Engineering* 42 (4), 912–924.
- Piazzola, J., Forget, P., Lafon, C., Despiou, S., 2009. Spatial variation of sea spray fluxes over a Mediterranean coastal zone using a sea state model Bound.-Lay. *Meteorol.* 132 (1), 167–183.
- Piazzola, J., Sellegri, K., Bourcier, L., Mallet, M., Tedeschi, G., Missamou, T., 2012. Physicochemical characteristics of aerosols measured in the spring time in the Mediterranean coastal zone. *Atmos. Environ.* 54, 545–556 <http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.02.057>.
- Reid, J.S., Brooks, B., Crahan, K.K., Hegg, D. a, Eck, T.F., O'Neill, N., De Leeuw, G., et al., 2006. Reconciliation of coarse mode sea-salt aerosol particle size measurements and parameterizations at a subtropical ocean receptor site. *J. Geophys. Res.* 111 (D2), D02202. <http://dx.doi.org/10.1029/2005JD006200>
- Resch, F., Afeti, G.M., 1991. Film drop distributions from bubbles bursting in seawater. *Research* 96, 10681–10688.
- Resch, F., Afeti, G.M., 1992. Submicron film drop production by bubbles in seawater. *J. Geophys. Res.* 97 (C3), 3679–3683.
- Tedeschi, G., Piazzola, J., 2011. Development of a 2D marine aerosol transport model: application to the influence of thermal stability in the marine atmospheric boundary layer. *Atmos. Res.* 101 (1–2), 469–479.
- Vaattovaara, P., Huttunen, P.E., Yoon, Y.J., Joutsensaari, J., Lehtinen, K.E.J., O'Dowd, C.D., Laaksonen, A., 2006. The composition of nucleation and Aitken modes particles during coastal nucleation events: evidence for marine secondary organic contribution. *Atmos. Chem. Phys.* 6, 4601–4616.
- Van Eijk, A.M.J., De Leeuw, G., 1992. Modeling aerosol particle size distributions over the North Sea. *J. Geophys. Res.* 97 (C9), 14417–14429. <http://dx.doi.org/10.1029/92JC01214>.
- Van Eijk, A.M.J., Kusmierczyk-Michulec, J., Piazzola, J., 2011. The advanced Navye Aerosol Model (ANAM): validation of small-particle modes Atmospheric Optics IV: Turbulence and Propagation. In: Alexander, A., Van Eijk, A.M.J., Stephen, M. (Eds.), *Proceedings of Spi*, vol. 8161. Hammel Editors, San Diego, California.
- Willeke, K., Baron, P.A., 1993. *Aerosol Measurement, Principles Techniques and Applications*. Van Nostrand Reinhold, New York.
- Young, I.R., 1999. *Wind generated ocean waves*. Elsevier Ocean Engineering Book Series, vol. 2. Elsevier Sciences.



**Ambre DEMOISSON**

Université de Toulon

Institut Méditerranéen d'Océanologie (MIO)

Bat X, Av. G. Pompidou, BP 56, 83162 La Valette Cedex

**Etude de la source et du transport des aérosols  
marins en zone côtière méditerranéenne**

La connaissance de la source et du transport atmosphérique de l'aérosol marin est primordiale pour mieux comprendre un grand nombre de processus physico-chimiques régissant les propriétés de la basse troposphère. C'est dans ce cadre que s'inscrit cette thèse dont l'objectif principal concerne la modélisation de la génération et du transport des aérosols marins en zone côtière Méditerranéenne. Cette étude a permis notamment l'amélioration du modèle de transport MACMod à partir d'un travail sur les conditions aux surfaces frontières. Une formulation de la fonction source spécifique à la région méditerranéenne nord-occidentale a été déterminée et certains effets des transformations subies par les particules issues de la production primaire au cours de leur transport atmosphérique ont été analysés. De plus, dans le but de mieux tenir compte du cas des zones anthropisées pour les conditions aux limites du modèle, un travail sur l'implémentation du code CHIMERE sur la région méditerranéenne a été initialisé. Enfin, une dernière partie a été consacrée à l'adaptation du modèle MACMod à la prévision de la qualité de l'air et le suivi des concentrations de PM<sub>2.5</sub> et PM<sub>10</sub>.

**Mot clés :** Aérosol marin, fonction source, qualité de l'air.

**Study of the source and the transport of sea-  
sprays in the Mediterranean coastal zone**

The knowledge of both the source and atmospheric transport of marine aerosols is needed for a better understanding of a large number of physicochemical processes that control the lower troposphere properties. In this context, the present work deals with the modelization of the generation and atmospheric transport of marine aerosols in the Mediterranean coastal zone. In particular, this study allowed improvement of the aerosol transport model MACMod on the basis of a specific work on the boundary conditions. A new formulation of the sea-spray source function has been determined for the northern Mediterranean and effects of the transformations of the sea-spray particles during their atmospheric transport were identified. In addition, to better take into account the influence of the anthropogenic zones for the boundary conditions, the implementation of the CHIMERE model on the study area was made. Finally, a last part of the thesis was dedicated to the use of the MACMod model for the air quality forecasting and the survey of the PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> concentrations.

**Keywords :** Sea-spray, source function, air quality.